FACULTE MIXTE DE MEDECINE ET DE PHARMACIE
DE LYON

Année 1963 - N° 15

TITRE DE LA THESE

APPLICATION DE LA SPECTROMETRIE γ A L'ANALYSE QUALITATIVE ET QUANTITATIVE DE TRACES DE RADIOELEMENTS DISSOUS DANS L'EAU.

Travail du Service Central de Protection contre les Rayonnements Ionisants
et du
Laboratoire de Physique Biologique de la Faculté Mixte de Médecine et de Pharmacie de LYON

THESE

présentée

à la Faculté Mixte de Médecine et de Pharmacie de LYON
et soutenue publiquement le 2 Octobre 1963
pour obtenir le grade de Docteur en Pharmacie (d'Etat)

par

BIZOLLON Charles-Albert

Docteur en Pharmacie (Université)
Licencié-ès-Sciences
Ex-Interne en Pharmacie des Hôpitaux de LYON
Chargé des fonctions de Chef de Travaux à la Faculté
Attaché au S.C.P.R.I.

né le 9 Mai 1931
à Corbelin - Isère

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41550014_0020

FACULTE MIXTE DE MEDECINE ET DE PHARMACIE
DE LYON

Année 1963 - N°

TITRE DE LA THESE

APPLICATION DE LA SPECTROMETRIE γ A L'ANALYSE QUALITATIVE ET QUANTITATIVE DE TRACES DE RADIOELEMENTS DISSOUS DANS L'EAU.

Travail du Service Central de Protection contre les Rayonnements Ionisants
et du
Laboratoire de Physique Biologique de la Faculté Mixte de Médecine et de Pharmacie de LYON

THESE

présentée

à la Faculté Mixte de Médecine et de Pharmacie de LYON
et soutenue publiquement le 2 Octobre 1963
pour obtenir le grade de Docteur en Pharmacie (d'Etat)

par

BIZOLLON Charles-Albert

Docteur en Pharmacie (Université)
Licencié-ès-Sciences
Ex-Interne en Pharmacie des Hôpitaux de LYON
Chargé des fonctions de Chef de Travaux à la Faculté
Attaché au S.C.P.R.I.

né le 9 Mai 1931
à Corbelin - Isère

R. UNIV.
BIBLIOTHEEK
LEIDEN

FACULTE MIXTE DE MEDECINE
ET DE PHARMACIE DE LYON

PERSONNEL DE LA FACULTE

M. J. LEPINE : Doyen Honoraire
membre de l'Institut

J. F. CIER : Doyen

M. H. HERMANN : Doyen Honoraire
correspondant de l'Institut

MM. M. LEVRAT, Assesseur
L. REVOL, Assesseur

PROFESSEURS HONORAIRES

MM. COLLET, GUIART, PATEL, LEPINE, TRILLAT, MOURIQUAND, MAZEL, GARIN, GATE, MARTIN, GABRIELLE, SANTY, DUCLOS, GUILLEMINET, HERMANN, ROCHET.

PROFESSEURS

MM.	CIBERT	Clinique urologique
	PONTHUS (détaché à Beyrouth)	Physique biologique
	DECHAUME	Clinique neuro psychiatrique et hygiène mentale
	CHAMBON	Chimie organique et toxicologie
	WERTHEIMER	Clinique chirurgicale B
	PAUPERT-RAVAULT	Clinique médicale B
	FROMENT	Clinique et prophylaxie cardio-vasculaires
	CROIZAT	Clinique médicale C
	ENSELME	Chimie biologique et médicale
	MALLET-GUY	Clinique chirurgicale A
	REVOL	Pharmacie galénique et matière médicale
	POLLOSSON	Clinique gynécologique
	PIGEAUD	Clinique obstétricale
	BOURRET	Médecine du travail
	LEVRAT	Clinique médicale A
	SOHIER	Hygiène et action sanitaire et sociale
	JOURDAN	Biologie médicale et pharmacodynamie
	NETIEN	Botanique et cryptogamie
	BERTRAND	Clinique chirurgicale C
	BADINAND	Chimie analytique pharmaceutique
	DREVON	Pharmacie chimique et pharmacologie
	ROCHE	Médecine légale et déontologie
	COUDERT	Parasitologie et pathologie exotique
	MOUNIER-KUHN	Clinique d'Oto-rhino-laringologie et d'audio-phonologie
	PAUFIQUE	Clinique ophtalmologique
	THIERS	Clinique de dermatologie, syphiligraphie & allergologie
	BRUN	Clinique de pneumo-phtisiologie
	CREYSSEL	Clinique traumatologique des membres

	DARGENT	Clinique carcinologique
	GUICHARD	Anatomie pathologique
	GIRARD Paul	Pathologie générale et expérimentale
	LATARJET	Anatomie
	PEYCELON	Pathologie chirurgicale
	GIRARD Marcel	Thérapeutique
	VACHON	Pathologie médicale
	GALY	Physio-Pathologie des voies respiratoires
	PAPILLON	Radiologie
	JEUNE	Clinique des maladies infectieuses
	GONIN	Hydrologie thérapeutique, climatologie & écologie sociale
	MONNET	Bactériologie
	BANSSILLON	Physiologie et pathologie obstétricales
	CHATONNET	Physiologie B
	GUINET	Clinique endocrinologique
	TRILLAT	Clinique de chirurgie orthopédique
	FREIDEL	Clinique stomatologique
	MARION Joseph	Clinique de chirurgie et d'orthopédie infantiles
	DORCHE	Matière médicale et législation pharmaceutique
	DUMONT Louis	Histologie et embryologie
	PERROT	Chimie (Section Pharmacie)
	CIER J. F.	Physiologie A.
	PERRIN J.	Thérapeutique chirurgicale et chirurgie opératoire
	X...	Clinique médicale infantile et hygiène du premier âge

PROFESSEURS A TITRE PERSONNEL

MM.	BERGER	Physique nucléaire appliquée à la médecine
	BERTOYE	Bactériologie
	CIER Jean-François	Physiologie
	MANSUY	Chirurgie générale
	COLLET	Chimie Pharmaceutique
	LECUIRE	Neuro-Chirurgie
	REVOL	Médecine Générale

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM.	ROMAN	Parasitologie
	CIER André	Pharmacie chimique et Pharmacologie
	FEROLDI	Anatomie pathologique
	MORET	Physique biologique

MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

MM.	CREYSSEL Roger	Chimie biologique
	THIVOLET	Hygiène
	GARIN	Parasitologie
	TOLOT	Médecine du Travail
	PINET	Electro radiologie
	DESPIERRES	Médecine générale
	ODDOUX	Botanique et cryptogamie
	De SOLLIERS	Chimie analytique
	LEJEUNE	Médecine générale et thérapeutique
	REBOUILLAT	Chirurgie générale
	BUFFARD	Electro-radiologie
	NAUSSAC	Maladies infectieuses

ROMAGNY	Pédiatrie
De MOURGUES François	Stomatologie
DUROUX	Anatomie
BOUCHET	Anatomie
BRETTE	Thérapeutique
TOMMASI	Anatomie pathologique
RIFFAT	Hygiène
JOUVET	Pathologie expérimentale
FAVRE-GILLY	Hématologie
GIROD	Histologie et embryologie
MALLEIN	Chimie analytique
GRAS	Chimie biologique
PEYRIN	Physique biologique
VIALLIER-RAYNARD	Bactériologie
FAUCON	Biologie médicale et Pharmacodynamie
FLANDROIS	Physiologie

AGREGES EN EXERCICE

MM.	PONT	Médecine générale
	VIGNON	Médecine générale
	PLAUCHU	Médecine générale
	TRAEGER	Médecine générale
	DEVIC	Médecine générale
	GARDE	Médecine générale
	PERRIN André	Médecine générale
	LARBRE	Médecine générale
	MORNEX	Médecine générale
	NORMAND	Médecine générale
	FRIES	Médecine générale
	LAMBERT	Médecine générale
	NOEL Gilbert	Médecine générale
	ROBERT	Médecine générale
	MARION Pierre	Chirurgie générale
	MICHAUD	Chirurgie générale
	JAUBERT de BEAUJEU	Chirurgie générale
	SAUTOT	Chirurgie générale
	GUILLEMIN	Chirurgie générale
	De MOURGUES Georges	Chirurgie générale
	FRANCILLON	Chirurgie générale
	SAUBIER	Chirugie générale
	MARET	Chirurgie générale
	DESCOTES	Chirurgie générale
	MICHOULIER	Chirurgie générale
	BURTHIAULT	Obstétrique
	DUMONT Martial	Obstétrique
	GARMIER	Obstétrique
	GIGNOUX	Oto rhino-laryngologie

GAILLARD	Oto-rhino laryngologie
FRANCOIS	Pédiatrie et puériculture
BETHENOD	Pédiatrie et puériculture
COLOMB	Dermatologie
COLIN	Médecine légale
GUYOTAT	Neuro-Psychiatrie
SCHOTT	Neuro-Psychiatrie
BONAMOUR	Ophtalmologie
HUGONNIER	Ophtalmologie
DURAND	Urologie
CHASSARD	Electro-Radiologie
ALLEGRE	Neuro-chirurgie
FAYSSE	Orthopédie
SCHNEPP	Orthopédie
KALB	Pneumo-phtisiologie
DUMAS	Stomatologie

EXAMINATEURS DE LA THESE

MM. BERGER Président
BADINAND
PERROT
MORET

AVANT - PROPOS

Monsieur le Professeur BERGER m'a acceuilli dans son Laboratoire il y a cinq ans. J'ai pu rapidement découvrir son amabilité, sa bienveillance envers ses élèves, sa grande simplicité tout en appréciant l'étendue de ses connaissances ainsi que la clarté de son enseignement.

Il m'a confié un sujet difficile qui s'est avéré d'un très grand intérêt. Je ne saurai trop le remercier des facilités qu'il m'a ménagées pour la conduite et l'achèvement de ce travail.

Très sensible à l'honneur qu'il me fait en présidant cette thèse, je le prie d'accepter l'expression de ma profonde gratitude et de mon affectueux attachement.

Monsieur le Professeur BADINAND est à l'origine de ma formation scientifique :

C'est dans son laboratoire hospitalier comme universitaire que j'ai appris à travailler. Sous sa direction j'ai effectué ma première thèse de Doctorat en Pharmacie. Depuis mon entrée au laboratoire de Monsieur le Professeur BERGER, c'est souvent vers lui que je vais encore pour chercher un renseignement, un conseil ou un encouragement.

Tout récemment il m'a témoigné son intérêt en me confiant la réalisation d'un projet qui lui est cher.

Je le remercie bien vivement de toutes ces marques de sympathie comme d'avoir accepté de juger ce travail.

Monsieur le Professeur PERROT a bien voulu accepter de faire partie de mon jury de thèse. L'intérêt qu'il me témoigne constamment a des racines profondes puisqu'alors que j'étais jeune étudiant il me fit l'honneur de me choisir comme moniteur de Travaux Pratiques.

Depuis il n'a cessé de mettre à ma disposition ses connaissances et ses conseils.

Je le prie de bien vouloir trouver ici l'assurance de mon attachement et de ma très sincère reconnaissance.

Monsieur le Professeur MORET a consacré depuis deux ans une grande partie de son temps à diriger ce travail, tantôt interprétant et discutant les résultats obtenus tantôt confectionnant les appareils décrits dans cette thèse.

Il l'a toujours fait avec la spontanéité et la gentillesse qui le caractérisent.

Qu'il me soit permis de lui dédier plus spécialement ce travail en remerciement.

Que Monsieur le Professeur PELLERIN, Directeur du Service Central de Protection contre les Rayonnements Ionisants, veuille bien agréer l'expression de mes respectueux hommages et ma sincère reconnaissance. Il est à l'origine de ce travail et il nous a fourni les moyens matériels modernes nécessaires à sa réalisation.

Je remercie tous mes Maitres de la Faculté Mixte de Médecine et de Pharmacie de LYON ainsi que de la Faculté des Sciences pour leur enseignement.

Mes remerciements vont également à tous mes amis du Laboratoire de Physique qui ont contribué d'une manière ou d'une autre à la réalisation de ce travail.

J'exprime ma gratitude à :

M. D. de SOETE de l'Université de Gand pour les conseils qu'il m'a donnés.

M. J. RODIER, Directeur du S.P.R. du Centre de Marcoule et à ses collaborateurs qui m'ont fourni certains prélèvements d'eau nécessaire à la poursuite de ce travail.

M. J. LAVERLOCHERE pour son acceuil au Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble.

INTRODUCTION

Dans le cadre du Service Central de Protection contre les Rayonnements Ionisants, le laboratoire de Physique Biologique de la Faculté de Médecine et de Pharmacie de Lyon fut chargé, en 1958 d'effectuer régulièrement des mesures de radioactivité sur certaines eaux de surface. Celles-ci, destinées aux besoins de l'homme, risquent éventuellement d'être contaminées par des produits de fission rejetés par des centrales nucléaires.

Pour un contrôle efficace, il fallait disposer d'une technique permettant :
1 - de déceler avec précision, dans le délai le plus court, une activité égale ou supérieure à la Concentration Maximale Admissible pour les Populations.
2 - dans ce cas, de caractériser les émetteurs responsables de la contamination.

Ces impératifs sont difficilement conciliables. Les Concentrations Maximales Admissibles pour les Populations fixées par la Commission Internationale de Protection contre les Radiations sont très basses (cf. TABLEAU I). L'isolement et l'identification des radioéléments deviennent difficiles, sinon impossibles, sans risque de grossières erreurs, pour des activités aussi faibles. Ils demandent de plus un certain temps : les résultats ne peuvent être connus rapidement et le contrôle perd beaucoup de sa valeur : d'où la notion de détection d'activité avant la notion d'identification.

On envisagea de mesurer simplement l'activité globale de l'eau sans séparation préalable des radioéléments. Cette solution que beaucoup de laboratoires ont d'ailleurs adoptée est très simple, ne nécessite que peu de manipulations et convient parfaitement à des mesures en série.

Les modes opératoires employés diffèrent sur certains points de détail mais sont comparables dans leurs grandes lignes : après filtration l'eau est acidifiée puis évaporée jusqu'à siccité. Son résidu ainsi que celui de la filtration sont transférés dans une coupelle ; leur activité est mesurée au compteur β (étalonné au préalable)

Les possibilités de cette méthode sont néanmoins très restreintes.

TABLEAU I

Concentrations Maximales Admissibles des Radioéléments dans l'eau de boisson pour les Populations.

Radioélément	Forme	C.M.A.P. ($\mu C/cm^3$)
^{90}Sr	soluble	10^{-7}
	insoluble	$4 \cdot 10^{-5}$
^{90}Y	soluble	$2 \cdot 10^{-5}$
	insoluble	$2 \cdot 10^{-5}$
^{95}Zr	soluble	$6 \cdot 10^{-5}$
	insoluble	$6 \cdot 10^{-5}$
^{95}Nb	soluble	10^{-4}
	insoluble	10^{-4}
^{103}Ru	soluble	$8 \cdot 10^{-5}$
	insoluble	$8 \cdot 10^{-5}$
^{106}Ru	soluble	10^{-5}
	insoluble	10^{-5}
^{131}I	soluble	10^{-6}
	insoluble	$6 \cdot 10^{-5}$
^{137}Cs	soluble	$2 \cdot 10^{-5}$
	insoluble	$4 \cdot 10^{-5}$
^{141}Ce	soluble	$9 \cdot 10^{-5}$
	insoluble	$9 \cdot 10^{-5}$
^{144}Ce	soluble	10^{-5}
	insoluble	10^{-5}
Mélange quelconque d'émetteurs α, β, γ.		10^{-8}

- Le résidu d'évaporation d'un litre d'eau représente une masse de 200 à 300 mg. Réparti dans une coupelle d'assez grande surface (6 cm2 par exemple) il constitue une couche possédant une densité superficielle de 30 à 50 mg/cm2. Il est nécessaire de tenir compte dans la mesure de l'activité de l'autoabsorption des rayons β. L'importance de ce phénomène, qui dépend de l'énergie des rayonnements, ne peut pas être évaluée avec précision puisque l'on ne connait pas l'identité des radioéléments contaminant l'eau.

Ceci constitue une première cause d'incertitude dans les résultats obtenus.

Il est possible d'envisager la mesure sur un résidu de masse plus faible : celui de 100 ml d'eau par exemple. La densité superficielle est de l'ordre de 3 à 5 mg/cm2 et l'on peut négliger l'autoabsorption.

On se heurte alors à d'autres difficultés : la Concentration Maximum Admissible pour les Populations d'un mélange inconnu β émetteur est de 10 pC/litre c'est à dire de 2,22 désintégrations/minute/100 ml d'eau. Or les ensembles de comptage ont tous une efficacité inférieure à 50 %. Ceci signifie que l'on ne peut espérer compter qu'une impulsion par minute sur un résidu de 100 ml d'eau ayant une activité égale à la Concentration Maximale Admissible pour les Populations.

Il est nécessaire de disposer d'un détecteur à bruit de fond stable et très faible (inférieur à une impulsion/minute) et d'effectuer les mesures pendant un temps très long (de 6 à 10 heures) pour que l'erreur de comptage ne soit pas trop importante.

A l'heure actuelle, grâce aux progrès réalisés dans l'appareillage, on peut mesurer avec une précision de l'ordre de 10 % de si basses activités. Le point délicat reste la conversion des impulsions comptées sur le résidu aux désintégrations dont celui-ci est le siège. En effet, on a affaire à un mélange inconnu de radioéléments dont l'efficacité de détection est variable suivant leur énergie.

On se contente d'effectuer des mesures comparatives par rapport à un étalon que l'on choisit arbitrairement (^{90}Sr - ^{90}Y, ^{137}Cs, ^{204}Tl, ^{40}K par exemple). Ceci conduit à diminuer ou au contraire à majorer, dans des limites que l'on ne connait pas, la valeur réelle de la radioactivité de l'eau.

En conclusion, cette méthode ne permet qu'une évaluation grossière de la contamination d'une eau. Elle est cependant utile car elle constitue si l'on peut dire

l'examen que l'on doit pratiquer sur tout échantillon.

Si la radioactivité β mesurée est inférieure ou égale à la Concentration Maximale Admissible pour les Populations, il n'y a pas lieu de poursuivre plus loin. Dans le cas contraire, cette détermination doit être obligatoirement suivie de l'identification des radioéléments.

Ceci pour 2 raisons : - 1) il est nécessaire de reconnaitre si le dépassement de la Concentration Maximale Admissible pour les Populations est dû à une radioactivité naturelle ou artificielle.

- 2) dans ce dernier cas, il s'agit de savoir si les éléments responsables sont dangereux pour l'homme.

- La radioactivité naturelle est dûe à des éléments (en particulier radium et ses descendants) présents dans les terrains et roches que les eaux peuvent traverser avant d'être captées.

Une autre cause importante de radioactivité naturelle est la présence dans les eaux de toute nature de sels de potassium. En effet, cet élément constitué pour la plus grande partie par du ^{39}K (93,3 %) renferme, outre du ^{41}K stable (6,7 %), du ^{40}K émetteur β,γ dont la période est longue (109 ans).

A titre d'exemple, citons le cas d'une eau d'alimentation de la vallée du Rhône. Elle possède une radioactivité β globale très supérieure à la Concentration Maximale Admissible pour les Populations puisqu'elle est comprise entre 80 et 100 pC/litre. Nous avons vérifié à plusieurs reprises que cette activité est dûe uniquement aux sels de Potassium.

- Parmi les produits de fission, certains sont très dangereux pour l'homme tant à cause de leur longue période que de leur métabolisme dans l'organisme humain. Ce sont essentiellement ^{90}Sr - ^{90}Y, ^{137}Cs, ^{103}Ru, ^{106}Ru - ^{106}Rh, ^{95}Zr - ^{95}Nb, ^{144}Ce - ^{144}Pr.
C'est pourquoi il est nécessaire de les rechercher dans toutes eaux susceptibles d'être contaminées. La présence de l'un d'entre eux à une concentration égale ou supérieure à la Concentration Maximale Admissible pour les Populations interdit l'utilisation de l'eau.

L'idntification des radioéléments dans les milieux les plus divers (air, sel, végétaux, lait, eau) a fait l'objet de très nombreux travaux.
Parmi les méthodes proposées, bien peu conviennent à la mesure d'aussi faibles activités.

Il n'est pas possible, en effet, d'envisager l'identification des radioéléments par détermination de leur période. Lors de rejet d'effluents radioactifs par une Centrale Nucléaire dans une eau de fleuve celle-ci n'est contaminée que par des éléments de longue vie car les produits de fission sont stockés un certain temps avant d'être éliminés. Même dans le cas où l'on aurait affaire à des éléments de courte vie (accident grave survenant à la Centrale Nucléaire) il serait très difficile de les identifier par l'étude de la période apparente de ce mélange.

Les méthodes chimiques sont plus intéressantes à considérer. Des réactifs appropriés permettent de précipiter les métaux d'un groupe déterminé et même d'isoler un élément à l'intérieur d'une même famille. Quelquefois on associe avec succès échange d'ions et séparation chimique.
Nous avons étudié la plupart de ces techniques et plus particulièrement celles qui concernent ^{90}Sr - ^{90}Y, ^{137}Cs et ^{106}Ru - ^{106}Rh. Les résultats obtenus sur des eaux renfermant d'assez fortes activités sont très satisfaisants puisque les rendements chimique et radioactif sont compris entre 80 et 90 %.
Il en va tout autrement dans le cas de faibles concentrations. Il est nécessaire alors d'opérer sur de très importantes prises d'essai (100 ou même 1 000 litres d'eau), ce qui nécessite des manipulations supplémentaires (concentration préalable des éléments) qui rendent encore plus longues ces techniques. Celles-ci, pensons-nous, peuvent être appliquées avec succès dans un contrôle régulier, mensuel par exemple, mais ne répondent pas à l'objectif que nous nous sommes fixé : déterminer rapidement la concentration du ou des éléments responsables de la contamination de l'eau.

Grâce aux progrès importants réalisés ces dernières années en matière d'appareillage, la spectrométrie γ s'est développée considérablement et ses domaines d'application s'étendent sans cesse : ceci est dû aux nombreuses possibilités qu'offre cette technique. Tout échantillon, gaz, liquide et même solide peut être analysé sans qu'il soit besoin de lui faire subir un traitement préalable : concentration des éléments par évaporation dans le cas d'une mesure d'activité globale, ou leur isolement par précipitation chimique ou fixation sur résine. Le spectromètre compte, directement sur la préparation, les rayonnements γ émis, les classe suivant leur énergie et par là-même permet d'identifier les radioéléments. La méthode supprime ainsi de nombreuses manipulations délicates et le gain de temps est appréciable.

Tout en étant très sensible et précise, elle est de plus d'un emploi très souple : on peut examiner indifféremment des échantillons de faible ou de forte activité et les conditions d'enregistrement peuvent aisément être modifiées suivant les besoins.

Disposant au laboratoire d'un ensemble de spectromètrie γ très complet nous avons entrepris de mettre au point une technique rapide permettant la mesure à faible niveau de comptage et l'identification des radioéléments contenus dans une eau.

NOTRE PLAN

1ère Partie

- Le rayonnement γ. Ses principales propriétés. Interaction avec la matière.

- Sa détection et sa mesure. Compteur à scintillation. Spectromètrie γ.

- Analyse qualitative et quantitative d'un mélange de radioéléments par spectromètrie γ.

2ème Partie - Travaux personnels

- Position du problème. Etudes antérieures effectuées sur ce sujet.

- Etudes expérimentales réalisées dans le but de mettre au point un ensemble de comptage répondant au but fixé.
  - disposition de la source vis à vis du détecteur.
  - mouvement propre du détecteur
  - efficacité de comptage des photons γ.
  - analyse des spectres γ complexes par suppression des distributions Compton.

- Description et caractéristiques de l'ensemble de comptage adopté.

- Méthode proposée pour la mesure dans les eaux de faibles concentrations en radioéléments. Ses applications.

PREMIERE PARTIE

CHAPITRE I

Les Rayons GAMMA - Origine - Propriétés - Leur interaction avec la matière

---

1. Généralités

En 1905, EINSTEIN et PLANCK émirent l'hypothèse que l'énergie électromagnétique n'est pas répartie de façon continue mais distribuée sous forme de quantités extrêmement petites, "finies", dont la valeur E se déduit de sa fréquence par la relation

$$E = h\nu$$

h = constante de Planck : $6{,}62.10^{-27}$ ergs/sec.

ν = fréquence de la radiation.

Cette hypothèse s'avéra valable pusiqu'elle permit d'expliquer certains effets qui apparaissent lors de l'interaction des rayonnements éléctromagnétiques avec la matière : effet photoéléectrique et effet Compton.

A ces quantités indivisibles d'énergie on associa l'idée d'une particule élémentaire de rayonnement : le photon.

Les rayons γ sont des photons au même titre d'ailleurs que les rayons X dont ils ne diffèrent que par leur origine.

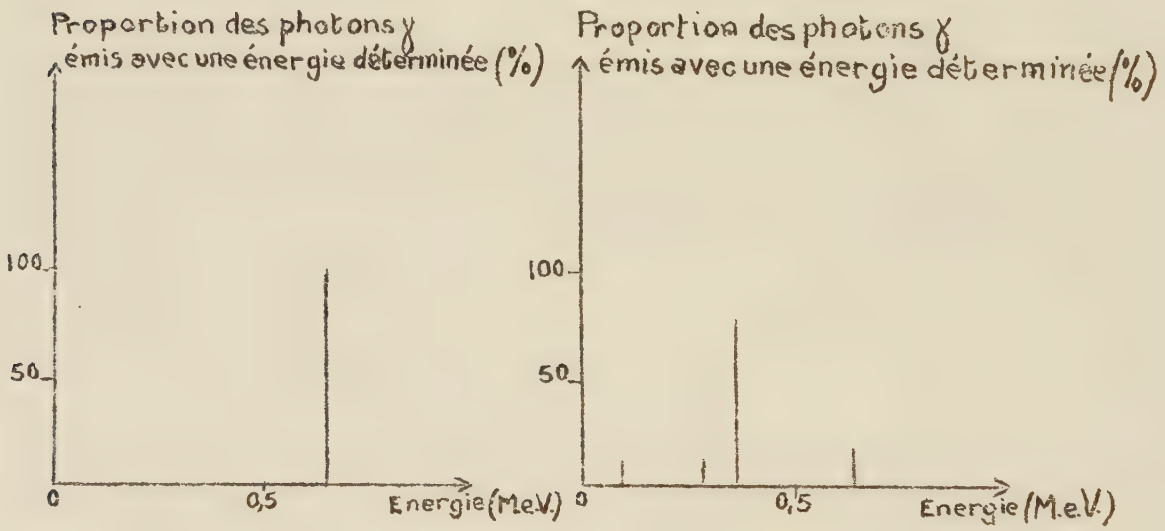
2. Origine des rayons γ émis par une source radioactive

A l'état stable, chaque noyau se trouve dans un état énergétique bien déterminé. C'est l'état fondamental W_o qui peut être pris comme niveau 0 des énergies.

Lors d'une désintégration (émission d'une particule α, β^-, β^+), le noyau résiduel peut se former dans un état excité d'énergie $W_1 \ldots W_2 \ldots W_x$.

Le retour à l'état fondamental se fait par réarrangement des nucléons qui passent sur des niveaux de moindre énergie. Au cours de ce réarrangement, le noyau abandonne la différence $\Delta W = W_x - W_o$ sous forme d'un ou de plusieurs photons γ. Le spectre d'émission γ d'un élément radioactif à l'opposé des spectres β (continus) est composé de raies dont le nombre, la position et l'importance respective caractérisent cet élément.

Nous donnons comme exemple les spectres γ du ^{137}Cs et de l'^{131}I. (cf. FIGURE I)



Spectre γ de ^{137}Cs FIGURE I Spectre γ de ^{131}I

Spectre γ de ^{137}Cs

L'étude des spectres γ est donc très intéressante. Au même titre que certains éléments stables, à l'état pur ou associés à d'autres corps, peuvent être analysés qualitativement et quantitativement par leur spectre d'émission ou d'absorption en lumière visible ou invisible, il est possible d'identifier et de mesurer l'activité de n'importe quelle source émettrice γ que celle-ci soit simple ou complexe, si l'on dispose d'appareils permettant de détecter ces raies et de mesurer l'énergie correspondante à chacune d'elles.

3. Interaction des rayons γ avec la matière.

Du fait de leur absence de charge, les photons γ ne développent aucune interaction à distance avec des électrons ou des noyaux du milieu traversé. Ceci explique pourquoi ils sont beaucoup plus pénétrants que les rayonnements chargés (α ou β) et que l'ionisation spécifique qu'ils produisent est plus faible.

Ce n'est seulement lors de chocs directs qu'ils réagissent. Ils peuvent alors soit être déviés de leur direction d'origine (diffusion) soit disparaître en cédant la totalité de leur énergie (annihilation).

3.1. La diffusion d'un photon γ a lieu lorsque celui-ci heurte sur son trajet dans la matière un électron ou un nucléon. Le premier cas est beaucoup plus fréquent que le second. Ceci pour deux raisons :

1 - La section efficace de diffusion calculée par KLEIN et NISHINA, est inversement proportionnelle au carré de la masse de la particule choquée P. Elle est donc d'autant plus grande que P est plus petit : ce qui explique que les chocs se produisent surtout sur les électrons.

2 - Lors d'une rencontre, le photon cède une partie de son énergie ΔE à P. La valeur de ΔE est inférieure ou égale au double du quotient q.

$$q = \frac{h\nu}{M_o c_2}$$

ΔE est négligeable quand hν est petit ou quand $M_o c_2$ est grand : c'est ce qui a lieu quand un photon de faible énergie heurte un noyau : la longueur d'onde diffusée est la même que la longueur d'onde incidente.

On distingue donc deux sortes de diffusion d'importance très inégale :

- la diffusion simple, cohérente, que subit un photon γ de faible énergie au voisinage de la matière. Il est dévié de sa direction initiale mais sa longueur d'onde n'est pas modifiée : c'est la diffusion Thomson.
- la diffusion dans laquelle un photon cède une partie de son énergie à la particule heurtée, un électron, ce qui se traduit par une augmentation de sa longueur d'onde associée.

Cet effet a été décrit pour la première fois par COMPTON en 1923. Il y a choc entre un quantum de rayonnement γ primaire $h\nu_o$ et un électron libre ou peu

lié. Celui-ci acquiert une certaine énergie cinétique qui provoque son recul.

Le photon diffusé possède une énergie $h\nu$ inférieure à $h\nu_o$ de la quantité cédée à l'électron.

$$h\nu_o = h\nu + \frac{1}{2} mv^2$$

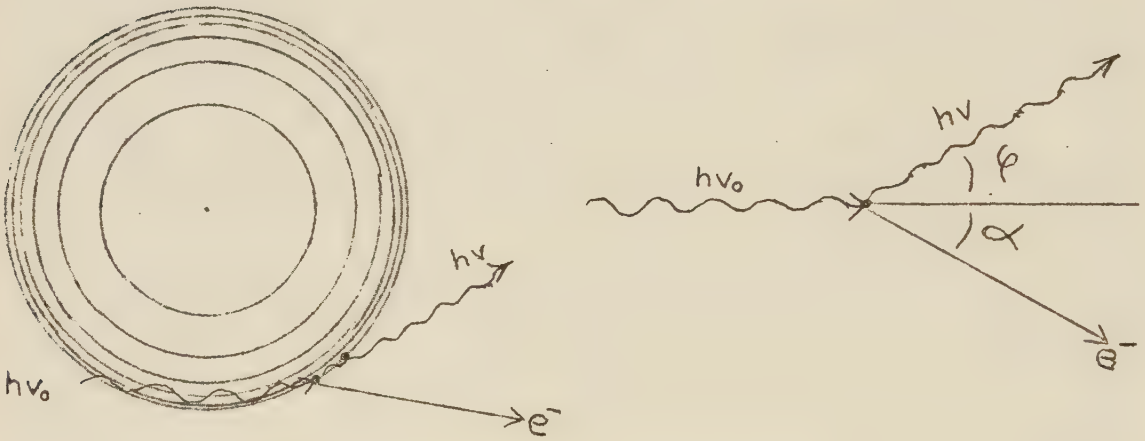


FIGURE 2

ϕ est l'angle que fait le rayon incident et le rayon diffusé.

α est celui que fait le rayon incident et la direction de l'électron de recul.

On montre que les trois grandeurs ($h\nu_o - h\nu, \alpha, \phi$) sont liées entre elles et surtout que :

1 - l'énergie de l'électron de recul dépend de ϕ et de l'énergie du photon incident. Elle est toujours inférieure à celle du photon incident. Le spectre des électrons de recul est donc continu entre les énergies 0 ($\phi = 0°$) et E_c maximum ($\phi = 180°$)

$$E_c \text{ max.} = \frac{h\nu_o}{1 + \frac{0,511}{2\ h\nu_o}}$$

2 - le photon diffusé a toujours une longueur d'onde plus grande que celle du photon incident. La différence $\Delta\lambda = \lambda - \lambda_o$ ne dépend que de ϕ. Pour $\phi = 180°$ elle est maximum, et correspond au retour en arrière du photon qui est rétrodiffusé (backscattering). $h\nu$ est alors minimum. Sa valeur se calcule à partir de la formule :

$$h\nu_{min} = \frac{h\nu_o}{1 + 3{,}9\ h\nu_o}$$

Tous ces résultats sont regroupés dans le schéma de la FIGURE 3. $h\nu_o$ est le quantum primaire diffusé par l'électron e. La longueur des vecteurs $h\nu_o$, $h\nu$, $h\nu_2$, $h\nu_3$, $h\nu_4$, $h\nu_5$ est proportionnelle à l'énergie du photon diffusé lorsque l'angle de diffusion augmente.

L'énergie des électrons de recul est représentée par les vecteurs de la courbe inférieure.

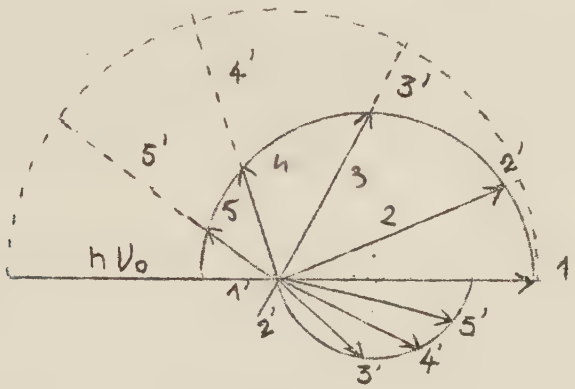


FIGURE 3

Schéma montrant l'effet Compton en fonction de l'angle que font le faisceau incident et les faisceaux diffusés.[1]

La section efficace de l'effet Compton dépend du numéro atomique de l'absorbant et de l'énergie du photon

$$\sigma_c = \text{constante} \times Z \times 1/f(h\nu)$$

Elle diminue donc quand l'énergie augmente mais cette diminution est lente : c'est pourquoi l'effet Compton est prédominant aux énergies intermédiaires.

3.2. L'annihilation d'un photon γ peut revêtir deux aspects différents suivant qu'elle se produit au contact d'une particule liée (électron pour l'effet photoélectrique, nucléon dans le cas de la photo-désintégration) ou dans le champ d'un noyau (phénomène de production de paire ou de matérialisation).

3.2.1. Nous n'étudions pas ici les réactions photonucléaires qui n'ont lieu qu'avec des photons d'énergie importante.

Dans l'effet photoélectrique, un photon γ heurtant un électron atomique situé sur une couche profonde

[1] d'après G.L. CLARK

(K ou L) disparait en lui cèdant toute son énergie $h\nu_o$.

Le résultat est le suivant :

3.2.1.1. L'électron heurté est éjecté de l'atome emportant avec lui une certaine énergie égale à

$$\frac{1}{2} mv^2 = h\nu_o - W_e$$

W_e étant l'énergie de liaison de l'électron avec l'atome.

Pour que ce phénomène ait lieu, il est nécessaire que le photon γ ait une énergie au moins égale à W_e. Lorsque cette condition est remplie, 80 % des effets photoélectriques se produisent avec des électrons de la couche K et la majorité des autres avec des électrons de la couche L.

3.2.1.2. L'atome qui a perdu un électron se trouve ionisé. Il s'en suit un réarrangement du cortège électronique : un électron de la couche L occupe la place vide de la couche K, l'énergie supplémentaire $We_K - We_L$ est émise sous forme de rayons X caractéristiques de l'élément. Il arrive que ceux-ci rencontrent sur leur trajet un électron peu lié : ils lui cèdent leur énergie et l'expulsent de l'atome. Cet électron, dit électron Auger, emporte à son tour une certaine énergie cinétique :

$$\frac{1}{2} mv^2 = We_K - We_L - We_1$$

We_1 étant l'énergie de liaison de l'électron Auger.

La section efficace de l'effet photoélectrique varie comme celle de l'effet Compton, avec le numéro atomique de l'absorbant et l'énergie des photons γ. Il existe cependant une différence importante : elle diminue beaucoup plus vite que dans le cas précédent quand l'énergie augmente :

$$\sigma_{ph} = \text{Constante} \times Z^n \times 1/h\nu^m$$

n est voisin de 4,5 et m de 7/2 pour des énergies comprises entre 0,1 et 3 Mev.

L'effet photoélectrique décroit donc très rapidement avec l'énergie.

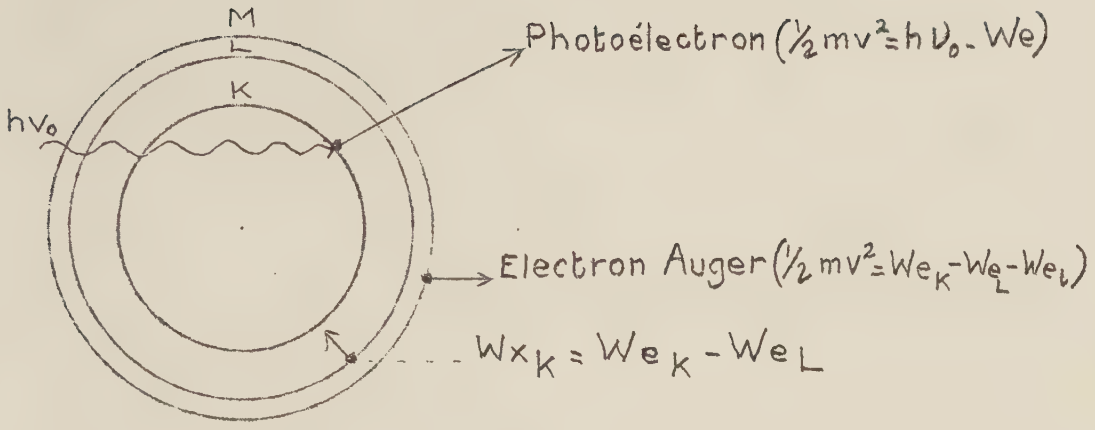


FIGURE 4

3.2.2. Phénomène de matérialisation

Il se produit avec des photons d'énergie supérieure ou égale à 1,02 Mev.

Lors d'une interaction avec le champ électrique d'un noyau, un quantum de rayonnement γ disparait avec la création de particules de masse au repos non nulle (deux, pour satisfaire aux lois de conservation) c'est ainsi qu'il y a production d'une "paire" négaton-positon dont l'énergie cinétique totale est égale à l'énergie du photon incident diminuée de l'énergie de masse des deux particules créées.

$$h\nu_o = 2\, m_o c^2 + 2\,\frac{mv^2}{2}$$

$$= 1{,}022 \text{ Mev} + mv^2$$

L'énergie $h\nu_o$ du photon a donc servi :

1 - à créer deux électrons : la masse d'un électron correspond d'après la relation d'EINSTEIN à 0,511 Mev.

2 - à donner une certaine énergie cinétique à ces électrons.

La durée de vie du positon créé est très courte : dès qu'il a perdu son énergie cinétique par ionisation et radiation de freinage, il va disparaître en s'annihilant avec un négaton. L'énergie de masse de ces deux électrons apparaît sous forme de deux photons γ de 0,511 Mev émis dans des directions opposées conformément aux lois de conservation :

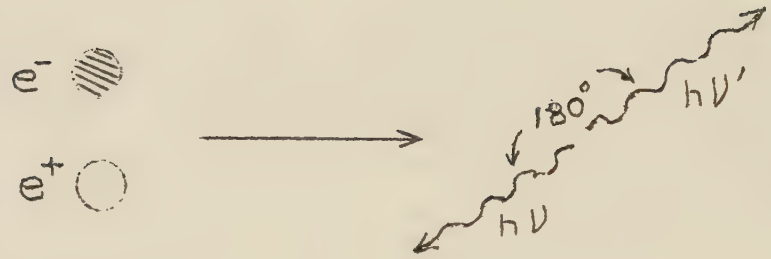


FIGURE 5

Il est à noter que la section efficace de ce phénomène est proportionnelle au carré du numéro atomique de l'absorbant et contrairement à σ_c et σ_{ph} elle croît rapidement avec l'énergie du photon incident.

En conclusion, trois phénomènes principaux concourent à l'absorption des photons γ dans la matière. L'importance de chacun d'eux est fonction à la fois de l'absorbant et de l'énergie des photons γ.

- l'absorption par effet Compton est proportionnelle au numéro atomique de l'absorbant.
- l'absorption par effet photoélectrique est proportionnelle à la quatrième puissance du numéro atomique de l'absorbant.
- l'absorption par effet de paire est proportionnelle au carré du numéro atomique de l'absorbant.

Pour un même absorbant, aux basses énergies l'absorption photoélectrique prédomine tandis qu'aux énergies élevées l'absorption est dûe presque entièrement à l'effet de paire. Aux énergies intermédiaires il existe une zone dans laquelle la diffusion par effet Compton prédomine. La FIGURE 6 rend compte de ces phénomènes dans l'iodure de sodium activé au Thallium et dans certaines substances organiques utilisées comme scintillateurs.

Il résulte de cela que si un faisceau monochromatique de photons γ traverse un absorbant, son spectre ne sera pas modifié si on l'observe dans sa direction initiale (faisceau collimaté à l'entrée et à la sortie de l'absorbant). Seule son intensité est diminuée. En l'absence de collimation, on voit apparaître dans le spectre des longueurs d'onde qui ont été introduites par effet Compton ou effet de paire.

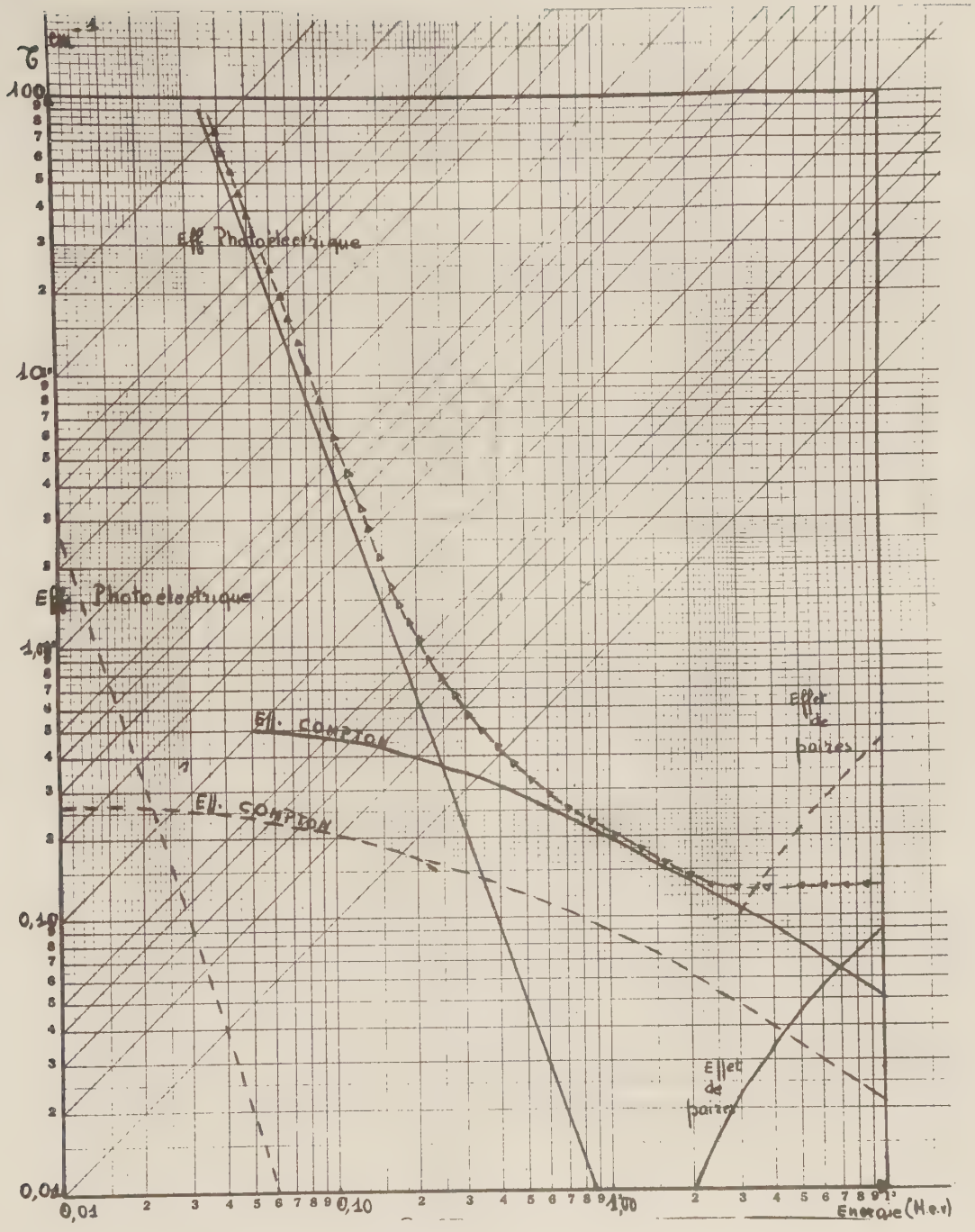


FIGURE 6

Coefficients d'absorption τ (cm^{-1}) des photons γ en fonction de leur énergie E (M.e.v)

——— Absorption des photons γ dans INa (Te)

— — — — Absorption des photons γ dans l'anthracène

—▵—▵—▵—▵—▵— Coefficient d'absorption globale des photons γ dans INa (Te)

(d'après KAI SIEGMANN. in "β and γ ray Spectroscopy" - 1955 - North Holland Publishing Compagny - Amsterdam).

CHAPITRE II

Détection des Rayonnements gamma
Détecteur à scintillation - Spectromètrie gamma

---

1. Détecteur à scintillation

Les appareils de détection des rayons γ sont variés : la chambre d'ionisation comme le compteur Geiger-Muller à cathode de plomb peuvent être utilisés mais l'on préfère employer à l'heure actuelle le compteur à scintillation que nous décrivons.
Il comprend deux parties : le cristal scintillant auquel est accolé un tube photo-multiplicateur.

Son principe est le suivant : lorsqu'un photon γ pénétre à l'intérieur du cristal, il engendre des électrons (photoélectrons, électrons Compton, électrons de paire). Ceux-ci, pendant leur parcours dans la matière, cèdent leur énergie en donnant naissance à des photons lumineux que reçoit le photomultiplicateur. Celui-ci les transforme en impulsions électriques (variation de potentiel dont la grandeur dépend de l'énergie du photon initial).

1.1. Le cristal scintillant joue donc deux rôles : celui d'absorbant des photons γ et celui d'émetteur de photons lumineux. C'est un convertisseur d'énergie.

1.1.1. Considérons un photon γ d'énergie $h\nu_o$ qui pénétrant dans le scintillateur heurte un électron atomique situé sur une couche K. Il va l'expulser par effet photoélectrique en lui communiquant une énergie cinétique

$$E_1 = h\nu_o - We_K$$

1.1.1.1. L'atome qui a perdu cet électron se trouve ionisé. Il va y avoir, comme nous l'avons vu, réarrangement de son cortège électronique en ce sens qu'un électron de la couche L va venir occuper la place laissée libre sur la couche K. L'énergie de désexcitation de l'atome est émise sous forme de photon X caractéristique. Celui-ci peut donner à son tour un effet photoélectrique ou quitter le cristal sans réagir.

1.1.1.2. L'électron ejecté heurte, sur son trajet, un électron appartenant à un autre atome. Celui-ci est soit :

- excité si l'électron touché passe simplement de son niveau fondamental à un niveau d'énergie supérieure. La désexcitation de l'atome c'est à dire le retour de l'électron à son état fondamental a lieu très rapidement. Elle se fait par émission d'un photon lumineux d'énergie égale à la différence entre les deux états.

- ionisé si l'électron le quitte à son tour en emportant avec lui une énergie cinétique

$$E_2 = E_1 - e_n$$

e_n = énergie de liaison de l'électron éjecté

C'est ce dernier électron que l'on dénomme rayon δ. Il y a très peu de chance que celui-ci quitte le cristal sans réagir puisque son parcours dans l'absorbant est faible. Il va, à son tour, exciter ou ioniser un atome selon le même processus que nous venons de voir.

Ces phénomènes se poursuivent jusqu'à ce que toute l'énergie cinétique du photoélectron ait été transformée en photons lumineux de désexcitation. Le nombre de ceux-ci dépend donc en fin de compte de l'énergie du photon incident.

En d'autres termes, l'absorption dans le cristal par effet photoélectrique d'un photon γ d'énergie $h\nu_o$ conduit à l'apparition d'une scintillation d'intensité I_o déterminée.

1.1.2. Si le même photon γ, d'énergie $h\nu_o$, réagit sur un électron libre ou peu lié, l'effet Compton se manifeste.

1.1.2.1. L'électron Compton est propulsé avec une certaine énergie cinétique. Celle-ci dépend, nous l'avons vu, de $h\nu_o$ mais aussi de l'angle que fait sa direction avec celle du photon incident.

Le sort de l'électron Compton est comparable à celui du photoélectron. Son énergie cinétique va être transformée progressivement en photons lumineux.

1.1.2.2. Le photon diffusé, d'énergie hν, peut se comporter de différentes façons :

- il quitte le cristal sans réagir :son énergie est perdue. Ce cas est assez fréquent.
- il donne un nouvel effet Compton : on revient au cas précédent qui peut se renouveller jusqu'à ce que le dernier photon diffusé s'échappe.
- il réagit par effet photoélectrique : toute l'énergie est communiquée au photoélectron qui, selon le processus vu plus haut, provoque l'émission de photons lumineux.

Il est à noter que si tous les photons, le photon initial comme ceux qui sont apparus par effet Compton réagissent dans le cristal, l'intensité du flash lumineux recueilli par le photomultiplicateur est la même que dans l'effet photoélectrique, c'est à dire égale à I_o.

Par contre, si l'un des photons diffusés s'échappe du cristal avant de réagir par effet photoélectrique ou effet Compton, son énergie est perdue. Le flash lumineux n'a plus qu'une intensité $I < I_o$.

1.1.3. Enfin, si le photon incident a une énergie $h\nu_o$ supérieure ou égale à 1,02 Mev, celui-ci peut disparaître en créant 2 électrons de signe opposé qui possèdent chacun une énergie cinétique

$$\frac{1}{2} mv_2 = \frac{h\nu_o - 1,02}{2} \text{ Mev}$$

1.1.3.1. Le positon après avoir perdu son énergie cinétique, par ionisation ou excitation d'atome, s'annihile par accouplement avec un négaton : il y a émission de 2 photons γ de 0,511 Mev, dits d'annihilation.
Ceux-ci peuvent - soit s'échapper : leur énergie est perdue

- soit donner un effet photoélectrique ou un effet Compton : on revient au cas précédent.

1.1.3.2. Le négaton perd lui aussi son énergie cinétique : il y a émission de photons lumineux.

Comme dans le cas précédent, si aucun des deux photons d'annihilation ne s'échappe du cristal, toute

l'énergie du gamma initial est utilisée. L'intensité du flash lumineux est la même que dans l'effet photoélectrique : I_o.

Par contre, si l'un ou les deux photons d'annihilation s'échappent du cristal avant de réagir, l'énergie utilisée sera inférieure de 0,511 ou de 1,02 Mev à $h\nu_o$ et I_o est diminuée d'autant.

Le TABLEAU II publié par le bureau de documentation de la RADIOTECHNIQUE rend compte de ces principaux phénomènes.

Les qualités d'un bon scintillateur peuvent se déduire de tout ce que nous venons de voir.

Celui-ci est d'autant meilleur :

- qu'il permet de détecter une plus grande proportion des photons qui le traversent.

- qu'il transforme avec un bon rendement l'énergie des électrons produits en photons lumineux. Ceux-ci doivent avoir une longueur d'onde correspondant au maximum de sensibilité de la photocathode, ne pas être absorbés dans le scintillateur.

Préconisé par HOFSTADTER, l'iodure de sodium, activé au Thallium, est le plus utilisé car il présente de nombreux avantages.

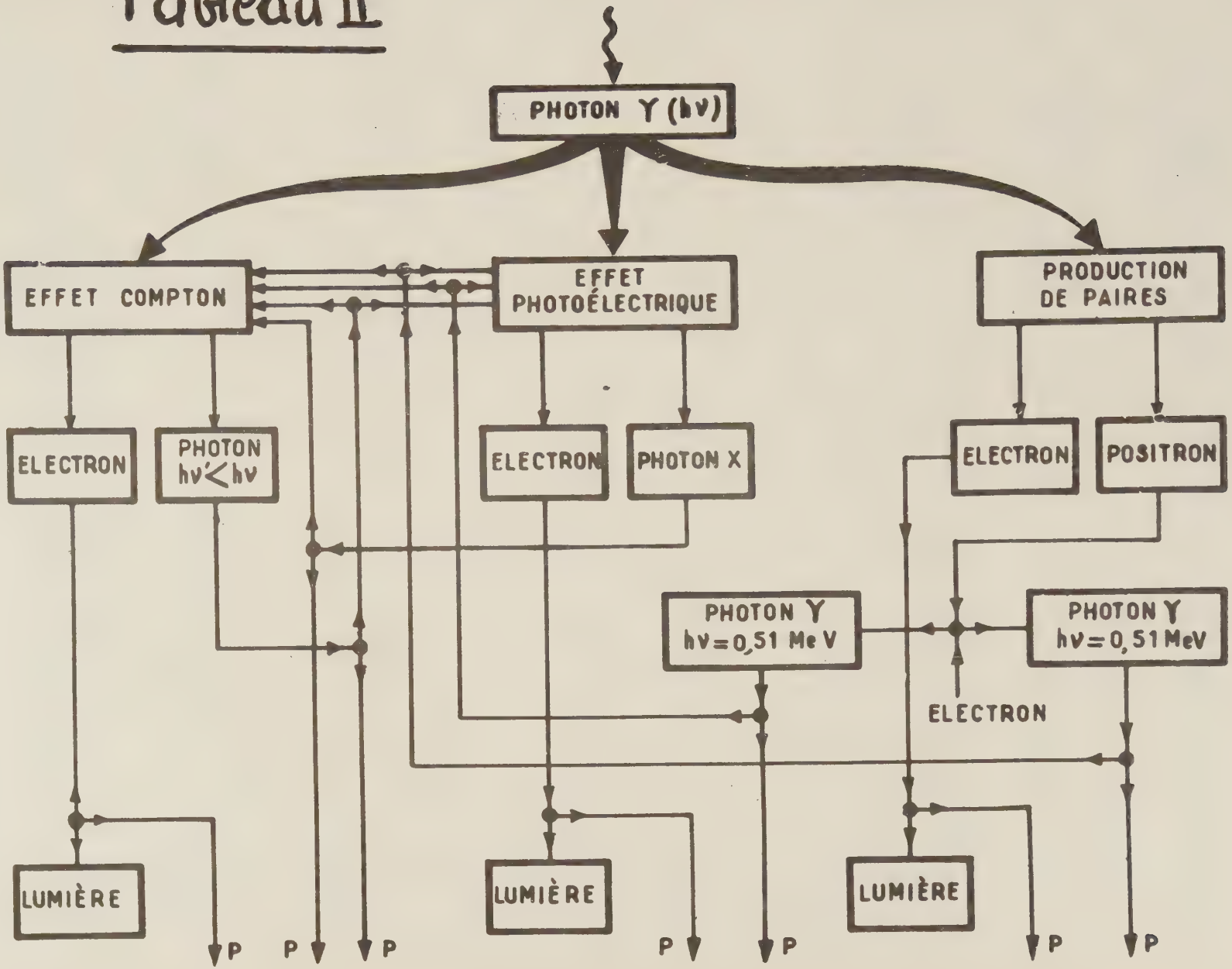
Par sa forte densité (3,67) et le numéro atomique élevé de l'iode il parvient à absorber toute l'énergie des gamma dans une grande proportion. Si l'on se reporte à la FIGURE 6, on constate que les photons γ ne réagissent dans l'INa(Tl) par effet photoélectrique que s'ils possèdent une énergie faible tandis que l'effet Compton est prédominant entre 0,500 et 2,500 Mev. Ceci montre, comme nous l'avons déjà dit, que de nombreux gamma diffusés par effet Compton perdent néanmoins toute leur énergie au sein du scintillateur.

Bien que le mécanisme de l'activation par le Thallium soit encore mal connu, l'addition à l'INa de cet élément en faible proportion augmente considérablement l'intensité lumineuse produite et l'efficacité de conversion (rapport de l'énergie lumineuse émise à l'énergie du photon incident) est voisine de 15 %.

Enfin, son spectre d'émission présente un maximum pour une longueur d'onde de 410 $\pm$ 40 mμ. Celle-ci correspond justement à la meilleure sensibilité de la couche sensible du P.M.

Les scintillateurs d'INa(Tl) se présentent sous la forme de mono-cristaux incolores pouvant atteindre

Tableau II


PHOTON γ (hν)
EFFET COMPTON
EFFET PHOTOÉLECTRIQUE
PRODUCTION DE PAIRES
ELECTRON
PHOTON hν'<hν
ELECTRON
PHOTON X
ELECTRON
POSITRON
PHOTON γ hν=0,51 MeV
PHOTON γ hν=0,51 MeV
ELECTRON
LUMIÈRE
LUMIÈRE
LUMIÈRE
P
P
P
P
P
P
P
P

d'assez grandes dimensions (25 cm de diamètre). Les plus courants ont un diamètre et une épaisseur compris entre 2,5 et 7,5 cm.

Ils sont très sensibles au choc et surtout hygroscopiques : c'est pourquoi ils sont livrés dans un boitier étanche fermé par une fenêtre transparente en verre dépourvu de potassium, qui assure la liaison optique entre le scintillateur et le photo-multiplicateur.

Les scintillateurs organiques sont beaucoup moins fragiles et d'un prix de revient bien plus faible. Ils peuvent, de plus, être usinés très facilement. C'est pourquoi leur emploi est très fréquent à l'heure actuelle. Nous avons utilisé dans notre travail, outre des cristaux d'INa(Tl), un scintillateur plastique organique.

Il est constitué d'une solution solide de substances fluorescentes (p.terphényl et tétraphénylbutadiène) dans un plastique : le polystyrène.

Contrairement à ce que nous avons vu pour le cristal précédent, sa densité est à peine supérieure à 1 et ses constituants (essentiellement hydrogène et carbone) ont un numéro atomique faible.

Comme le montre la FIGURE 6, un photon γ ne peut réagir dans ce scintillateur par effet photoélectrique que s'il possède une énergie inférieure à 0,100 Mev. Au delà de cette limite il peut facilement traverser tout le cristal sans réagir (ce qui est fréquent) ou ne céder qu'une faible partie de son énergie.

Le nombre de photons lumineux recueillis par le photomultiplicateur est donc bien inférieur à celui que l'on obtient quand toute l'énergie du photon γ est dissipée dans le scintillateur d'INa(Tl).

Nous nous sommes servis de ce cristal, nous le verrons plus loin, pour étudier le spectre dit "Compton" de divers radioéléments.

1.2. Le photomultiplicateur d'électrons qui fait suite au scintillateur, peut être considéré comme une cellule photoélectrique à laquelle est associé dans le même tube un amplificateur à gain élevé qui va permettre de mesurer l'énergie abandonnée dans le cristal.

Il comprend une photocathode, une optique électronique dite optique d'entrée, un certain nombre d'électrodes à émission secondaire dites dynodes, enfin une anode. (cf. FIGURE 7)

1.2.1. La photocathode est l'un des éléments essentiels du photomultiplicateur. Elle assure la transformation de l'énergie lumineuse en énergie électrique.

En effet, lorsqu'un photon lumineux arrive sur la couche sensible (antimoniure de Césium) de la photocathode il lui cède toute son énergie ou au moins la plus grande partie en réagissant par effet photoélectrique.

Si l'on veut obtenir un bon rendement de comptage des photons lumineux, on comprend qu'il soit nécessaire que la transformation de l'énergie lumineuse en énergie électrique soit la plus parfaite possible. On dispose actuellement de photomultiplicateurs pour lesquels celle-ci est de l'ordre de 50 à 90 % avec un maximum de sensibilité pour λ = 460 m .

1.2.2. Les électrons libérés par effet photoélectrique parviennent à la première dynode grâce à la différence de potentiel (100 à 200 volts) qui existe entre cette électrode et la photocathode. Ils possèdent alors une énergie cinétique suffisante pour éjecter de celle-ci un grand nombre d'électrons secondaires.

Ceux-ci sont ensuite accélérés en direction de la prochaine dynode ; le phénomène précédent se renouvelle de sorte qu'à chacune des électrodes le nombre d'électrons est multiplié par un facteur déterminé : 10 par exemple.

Ainsi, si les électrons ont rencontré sur leur trajet 10 dynodes, leur nombre initial a été multiplié par 10^{10} : d'où le nom de photomultiplicateur.

1.2.3. Les électrons finissent par être captés par l'anode. La chute de tension dans la résistance d'anode pourra ainsi atteindre un volt ou plus à partir d'un très petit nombre de photoélectrons émis par la photocathode.

Les qualités demandées au photomultiplicateur sont donc:

- d'assurer la meilleure transformation possible de l'énergie lumineuse en énergie électrique au niveau de la photocathode.

- de donner un gain élevé et constant d'électrons au niveau des dynodes.

- d'avoir un courant résiduel très faible. Celui-ci est dû aux particules ionisantes parasites (rayonnement cosmique absorbé dans les matériaux légèrement fluorescents du tube, radioactivité du verre contenant

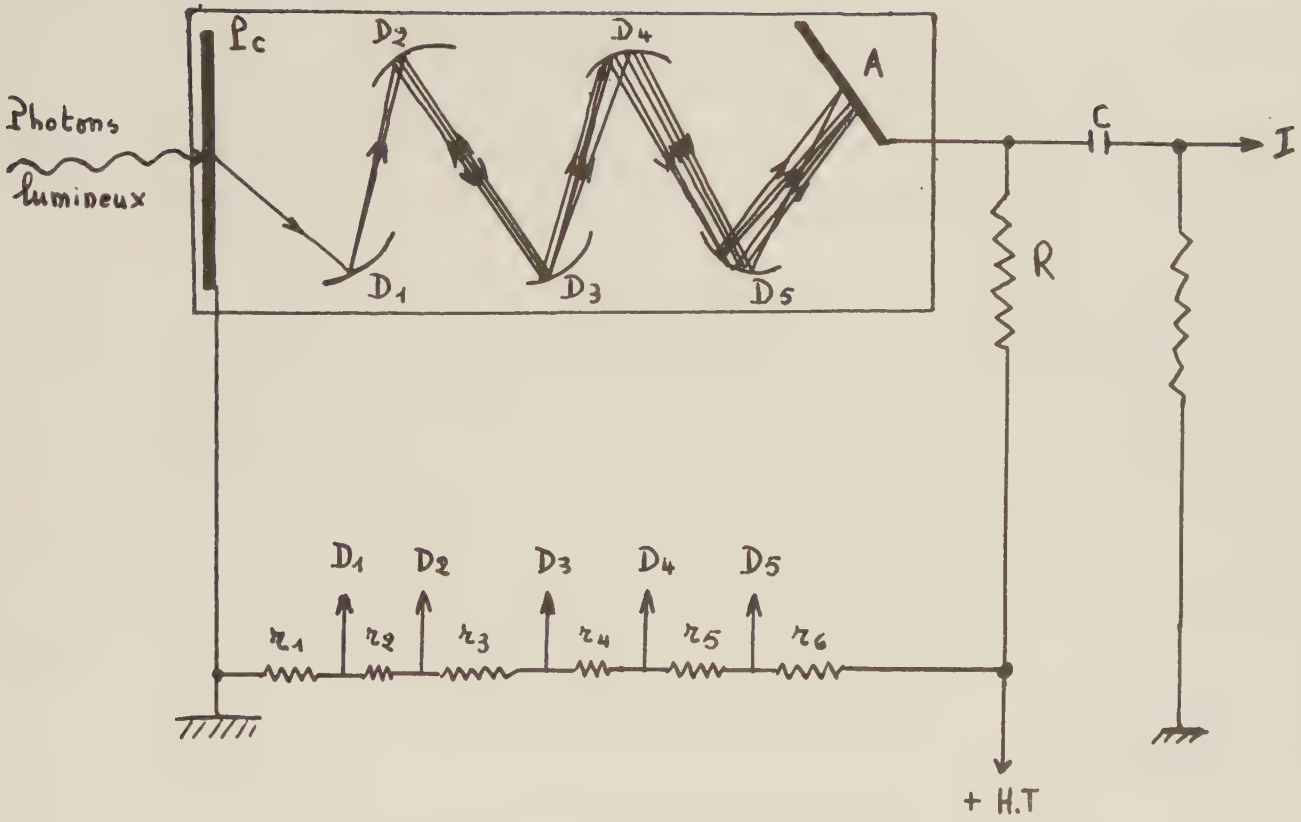


FIGURE 7

SCHEMA SIMPLIFIE D'UN PHOTOMULTIPLICATEUR

Pc : Photocathode

D_I à D_5 : Dynodes

r_I à r_6 : résistances servant à définir le potentiel des dynodes

R : résistance d'anode

I : sortie des impulsions

A : Anode

du ^{40}K) et surtout aux électrons thermiques, émis par la photocathode, qui vont réagir comme les autres électrons au niveau des dynodes.

2. Ensemble de comptage des rayons γ

2.1. Le compteur à scintillation, encore appelé sonde à scintillation, est donc constitué par le cristal scintillant et le photomultiplicateur unis l'un à l'autre au niveau de leur fenêtre à l'aide d'une substance transparente d'indice compris entre celui du verre et celui du détecteur. On emploie le plus souvent une graisse silicone.

2.1.1. Le choix des dimensions du scintillateur et par suite du diamètre de la fenêtre du photomultiplicateur est fonction de l'énergie des gamma que l'on veut détecter. En effet, comme nous l'avons vu, le but recherché est d'absorber dans le cristal toute l'énergie du plus grand nombre des rayons γ émis par la source. Pour cela il est nécessaire d'augmenter la taille du détecteur au fur et à mesure que l'énergie des gamma est plus élevée. Il faut néanmoins considérer que la sonde à scintillation perd alors beaucoup de ses qualités, notamment sa résolution, et qu'elle coute très cher.

Un compromis est donc nécessaire : en pratique, on utilise pour des énergies inférieures à 0,700 Mev un cristal de 2,5 cm d'épaisseur et de 3,75 cm de de diamètre (1 × 1,5 pouces) ; au delà de cette valeur, on emploie un cristal de 7,5 × 7,5 cm (3 × 3 pouces).

2.1.2. La sonde à scintillation est alimentée par une haute tension continue et stable puisqu' il doit exister toujours la même proportionnalité entre l'énergie des particules détectées et la hauteur des impulsions.

Celles-ci, à la sortie du photomultiplicateur sont amplifiées parfois avant d'arriver à l'échelle de comptage. Le gain demandé aux amplificateurs doit pouvoir être fixé à des niveaux différents, rester constant au cours des mesures et ne dépendre ni de la forme ni de la hauteur des impulsions.

2.2. Sonde à scintillation, haute tension stabilisée, préamplificateur, amplificateur, échelle constituent l'ensemble de comptage dont on doit définir, avant toute mesure, l'efficacité de comptage des rayons γ émis par la source à étudier.

Ceux-ci, en effet, ne sont pas tous détectés :

- certains ne pénétrent pas dans le scintillateur car ils ne sont pas compris dans l'angle solide défini par la géométrie source scintillateur.

- ils peuvent être diffusés par l'enveloppe qui entoure le cristal.

- certains pénètrent dans le scintillateur, le traversent sans réagir.

D'autre part, les scintillations émises par le cristal ne donnent pas toutes lieu à un effet photoélectrique sur la photocathode.

Il est difficile de déterminer avec exactitude l'influence de ces différents phénomènes sur l'efficacité de comptage. Celle-ci peut néanmoins être connue avec précision si l'on dispose d'une source renfermant en quantité connue l'élément à étudier (N photons γ émis par unité de temps). On effectue une mesure de celle-ci. Le rapport du nombre d'impulsions n comptées par unité de temps sur N constitue l'efficacité globale de détection des photons γ émis par l'élément.

Si un tel ensemble de comptage convient parfaitement toutes les fois que l'on doit déterminer l'activité d'une source renfermant un radioélément connu, il n'est plus suffisant lorsque l'on veut caractériser plusieurs nuclides au sein d'un échantillon et apprécier leur proportion respective. On a alors recours à la spectrométrie γ..

3. Spectrométrie γ

3.1. Nous avons vu que chaque photon γ est émis avec une énergie déterminée et qu'un radioélément émetteur γ est caractérisé par son spectre constitué d'une ou de plusieurs raies bien définies.

3.1.1. La spectrométrie γ a pour but l'étude de ces raies, leur localisation sur l'échelle des énergies (spectrométrie qualitative permettant l'identification des éléments radioactifs) et l'appréciation de leur amplitude (spectrométrie quantitative).

3.1.2. Un spectromètre γ ne diffère de l'ensemble de comptage décrit plus haut que parce qu'il comporte, intercalé entre l'amplificateur linéaire et l'échelle, un sélecteur d'amplitude.

Celui-ci est constitué de deux discriminateurs D_1 et D_2 et d'un circuit d'anticoïncidence A.C.

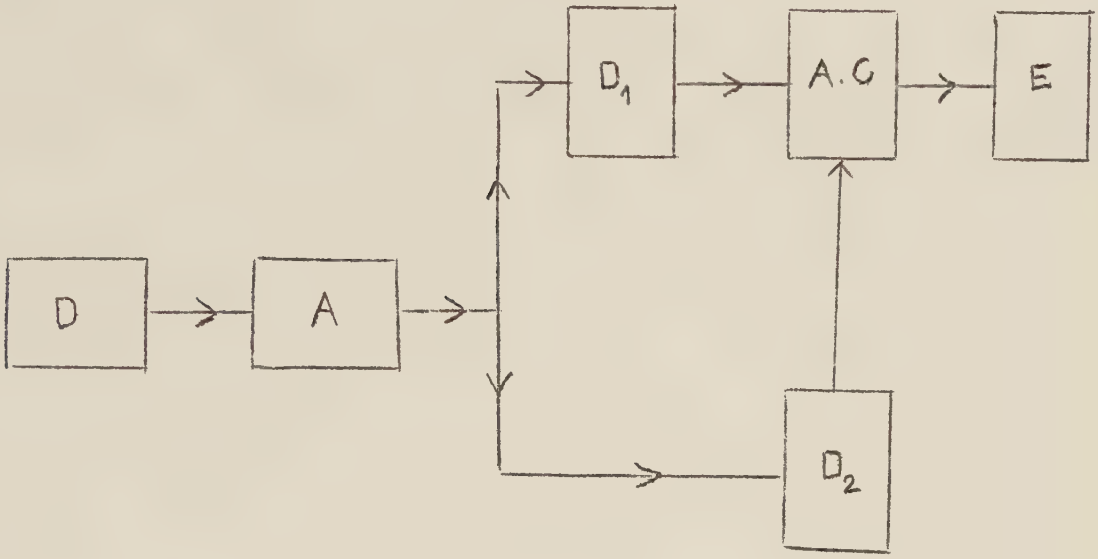


FIGURE 8

D	Détecteur
A	Amplificateur
D_1	Discriminateur de seuil h_i
D_2	Discriminateur de seuil h_s
A.C.	Circuit d'anticoïncidence
E	Echelle

Le fonctionnement de l'ensemble est le suivant :

- D_1 délivre un signal, qui sera éventuellement transmis à E par A.C. chaque fois qu'il reçoit une impulsion venant de A, de hauteur égale ou supérieure à h_i

- D_2 délivre un signal, qui ferme A.C. chaque fois qu'il reçoit une impulsion de hauteur supérieure à $h_i + \Delta h_i$

h_i et Δh_i, exprimées en volts, peuvent être ajustées à toute valeur désirée pourvu que celle-ci soit compatible avec les possibilités de l'appareil (en pratique de 0 à 100 volts).

On conçoit que E ne comptera que les impulsions délivrées par D qui après amplification par A auront une hauteur h telle que :

$$h_i \leqslant h < h_i + \Delta h_i$$

soit $h_i \leqslant h \leqslant h_s$ en posant $h_i + \Delta h_i = h_s$

Ainsi, dans l'exemple choisi sur la FIGURE 9, seule l'impulsion 2 sera comptée.

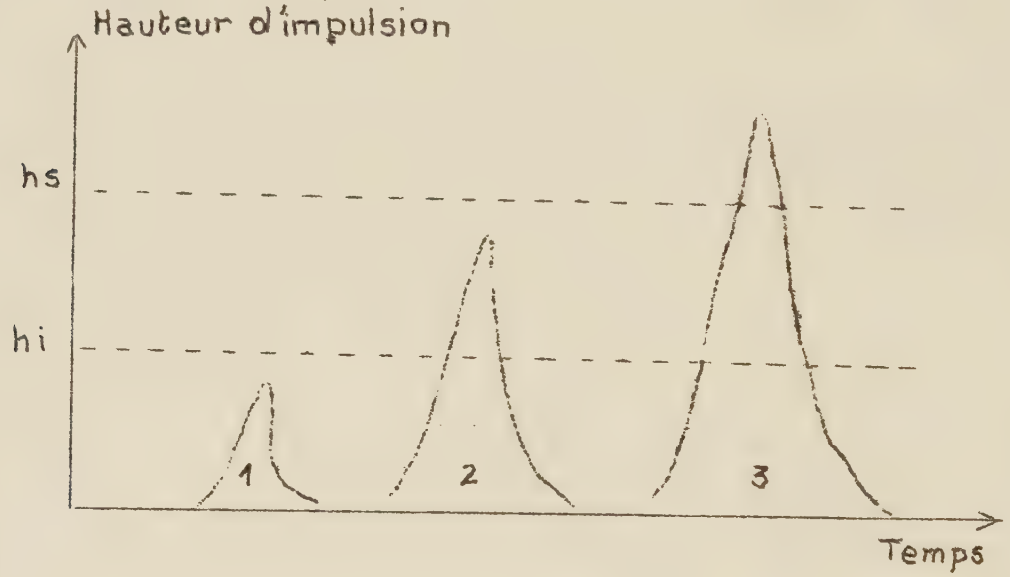


FIGURE 9

On dit que l'ensemble constitue un sélecteur d'amplitude à un canal

de seuil inférieur h_i

de seuil supérieur h_s

de largeur Δh

dont D_1 est le discriminateur de seuil inférieur

et D_2 le discriminateur de seuil supérieur.

Lorsque l'on veut tracer le spectre d'un rayonnement γ on explore toutes les hauteurs d'impulsions en déplaçant progressivement à la main ou automatiquement les niveaux des discriminateurs D_1 et D_2 tout en gardant Δh constant.

3.1.3. Jusqu'à ces dernières années on ne disposait que de ce spectromètre monocanal. Actuellement, grâce aux progrès réalisés dans l'appareillage, il existe des spectromètres comportant un nombre de plus en plus grand de canaux : 50, 100, 200, 500 et même 1 000 canaux.

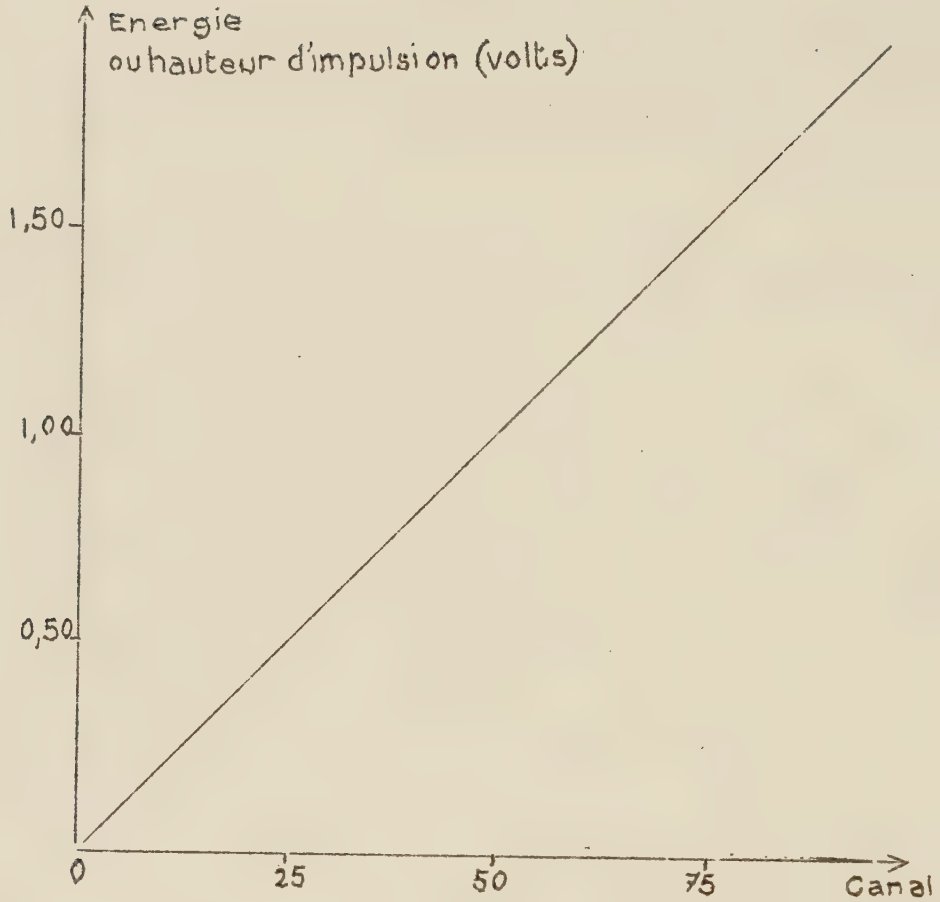
Dans ces appareils il n'existe plus de circuit d'anticoïncidence qui provoque le rejet de certaines impulsions. Toutes sont analysées puis comptées dans le canal qui correspond à leur hauteur.

Pour l'enregistrement d'un spectre on peut utiliser l'ensemble des canaux ou une fraction seulement de ceux-ci : la moitié ou le quart suivant le cas. On dispose alors de deux ou quatre parties que l'on utilise pour l'étude simultanée de 2 ou 4 distributions spectrales. De plus, la superposition de celles-ci réalisable grâce à un dispositif spécial, constitue une propriété intéressante que l'on met à profit toutes les fois que l'on recherche un radicélément dans un mélange. Il suffit d'accumuler dans la première moitié des canaux (1) le spectre donné par le mélange, dans la seconde moitié (2) la distribution simple de l'élément que l'on recherche. La comparaison des deux spectres permet de conclure rapidement : si une raie d'absorption totale de (1) correspond à celle de (2), l'élément recherché est bien présent dans le mélange.

Ces appareils possèdent deux seuils réglables S_1 (seuil inférieur) et S_2 (seuil supérieur) ; pour des valeurs déterminées de ceux-ci, seules les impulsions électriques d'une hauteur définie H ($S_1 < H < S_2$) seront comptées. Dans une distribution énergétique il est ainsi possible d'isoler une partie de celle-ci, la raie d'absorption totale par exemple, et de n'enregistrer que les impulsions qui la constituent, supprimant toutes celles dûes au bruit de fond (localisées dans les premiers canaux) et à la distribution Compton. Les mesures deviennent plus rapides et partant plus précises.

Ces spectromètres enfin sont munis d'une mémoire magnétique qui conserve pendant un temps indéfini les informations accumulées dans les canaux.

FIGURE 10



Etalonnage d'un spectromètre γ en énergie

3.2.1. Plaçons devant une sonde à scintillation munie d'un cristal INa(Tl) et reliée à un spectromètre γ à 100 canaux par exemple une source constituée par un élément radioactif émettant des photons γ monoénergétiques ($h\nu_o$ = 1,80 Mev). Le gain de l'amplificateur est choisi de telle sorte que les impulsions V correspondant à l'absorption totale des γ dans le cristal, c'est à dire à l'énergie 1,800 Mev, se logent dans le canal 90. Dans ces conditions, la largeur de chaque canal dV, exprimée en volts, correspond à une énergie de 0,020 Mev. (cf. FIGURE IO)

Les photons γ pénètrant dans le cristal peuvent réagir, comme nous l'avons vu, de 3 façons différentes :

1 - par effet photoélectrique : toute leur énergie dissipée dans le scintillateur donne lieu à l'émission d'un flash lumineux d'intensité définie I_o. Les impulsions électriques sortant du photomultiplicateur ont toute la même hauteur V et sont comptées exclusivement dans le canal 90.

2 - par effet Compton : $h\nu_o$ est répartie entre un électron de recul et un photon diffusé $h\nu$. Si celui-ci ou les autres photons diffusés, qui apparaissent par de nouveaux effets Compton, sont absorbés dans le cristal, toute l'énergie $h\nu_o$ est utilisée : le flash lumineux a la même intensité I_o que dans le cas précédent, les impulsions ont la hauteur caractéristique V et sont comptées dans le canal 90.

Si par contre, un des photons diffusés s'échappe, son énergie est perdue. Seule, celle de l'électron Compton intervient dans la production des scintillations. Elle dépend, nous l'avons vu, de l'énergie du photon incident et de l'angle que fait la direction de celui-ci avec celle du photon diffusé.

Aussi, les impulsions électriques produites à la suite de toutes les interactions par effet Compton ont des hauteurs qui varient de 0 à Vc. Le spectre Compton est donc continu. Vc caractérise ce que l'on appelle le front Compton. Celui-ci correspond à l'énergie maximum qu'un photon incident peut céder à un électron dans le scintillateur par diffusion Compton.

L'énergie du front Compton $E_{compt.}$ est donnée par la relation

$$E_{compton} = h\nu_o/(1 + \frac{mc^2}{2h\nu_o})$$

Dans le cas particulier choisi, $h\nu_o$ = 1,80 Mev, l'énergie du front Compton est égale à 1,58 Mev ; les impulsions électriques correspondantes sont comptées dans le canal 79.

3 - par effet de paire

Le négaton se comporte comme l'électron apparu dans l'effet photoélectrique ou Compton.

Le positon après avoir cédé toute son énergie cinétique s'annihile avec un négaton en donnant naissance aux photons γ de 0,511 Mev.

Si ceux-ci réagissent dans le cristal par effet photoélectrique, toute l'énergie $h\nu$ est utilisée et la hauteur des impulsions électriques est égale à V.

Il n'en est plus de même lorsque l'un ou les 2 photons γ s'échappent : les impulsions ont une hauteur de $V - V_D$ et $V - 2\ V_D$ (V_D correspond à l'absorption d'une énergie de 0,511 Mev) et sont comptées dans les canaux 65 et 40.

A partir de ces données, il est possible de tracer le spectre énergétique des photons γ de 1,800 Mev réagissant dans un cristal d'INa(Tl).

Si l'on porte en abscisses la hauteur des impulsions électriques en volts ou ce qui revient au même l'énergie (exprimée en Mev) abandonnée dans le scintillateur par chaque photon détecté et en ordonnées le nombre d'impulsions comptées dans chaque bande dV c'est à dire dans chaque canal on obtient la distribution suivante : (cf. FIGURE II)

1 - la raie V, située dans le canal 90, est dite raie d'absorption totale, improprement appelée parfois pic photoélectrique. Elle correspond à l'absorption totale dans le cristal de l'énergie $h\nu_o$ (1,800 Mev) du photon initial, que celle-ci soit dûe à un effet photoélectrique simple, à de multiples effets Compton ou à un effet de paire sans échappement de photons diffusés ou d'annihilation.

2 - La distribution Compton qui correspond à une absorption partielle de l'énergie $h\nu_o$ est continue. Elle s'étend de 0 à Vc qui est caractéristique de $h\nu_o$.

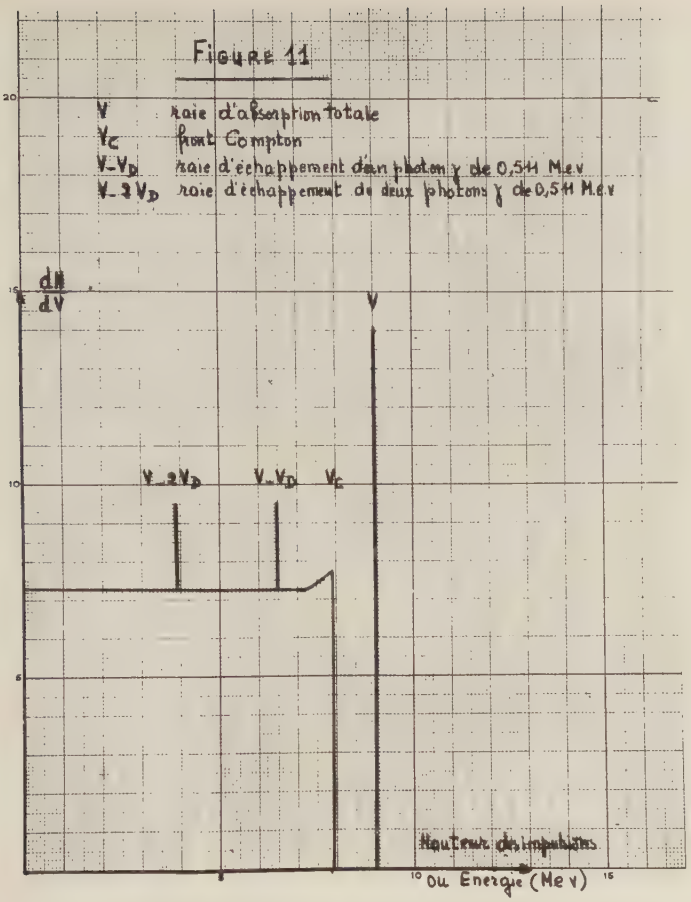
3 - enfin les 2 raies $V - V_D$, $V - 2\,V_D$ correspondent à des effets de paire suivis de l'échappement de l'un ou des 2 photons d'annihilation de 0,511 Mev.

3.2.2. Il est à noter que cette distribution est la plupart du temps perturbée par l'apparition de raies parasites. Celles-ci sont dûes à l'absorption dans le cristal de radiations X ou γ provenant d'interactions des photons initiaux avec les matériaux entourant la source : support de la source, blindage etc.

En effet, certains photons γ d'énergie $h\nu_o$ (1,800 Mev) émis dans une autre direction que celle du scintillateur réagissent avec des matériaux :

1 - par effet photoélectrique. Ce phénomène est important avec des blindages de plomb. L'absorption du gamma provoque l'émission de rayons X (énergie de liaison de l'électron K) caractéristiques de ce métal. Ceux-ci peuvent pénètrer dans le cristal et y céder leur énergie. Une raie parasite à 0,072 Mev apparait dans le spectre vu plus haut.

2 - par effet Compton. Certains des photons créés par diffusion dans un matériau quelconque s'échap-



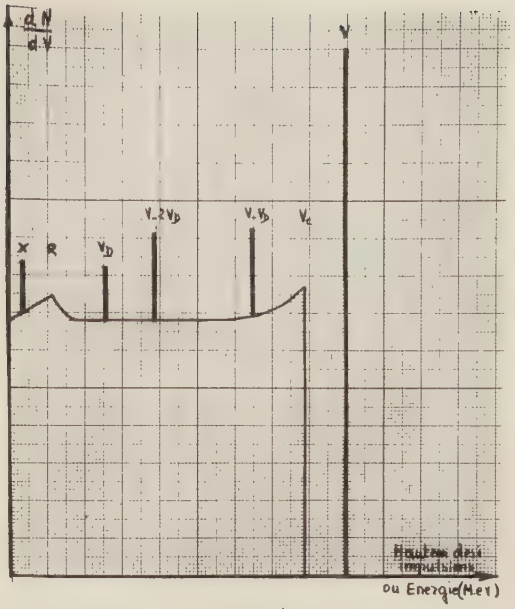


FIGURE I2

V : raie d'absorption totale

V_C: front Compton

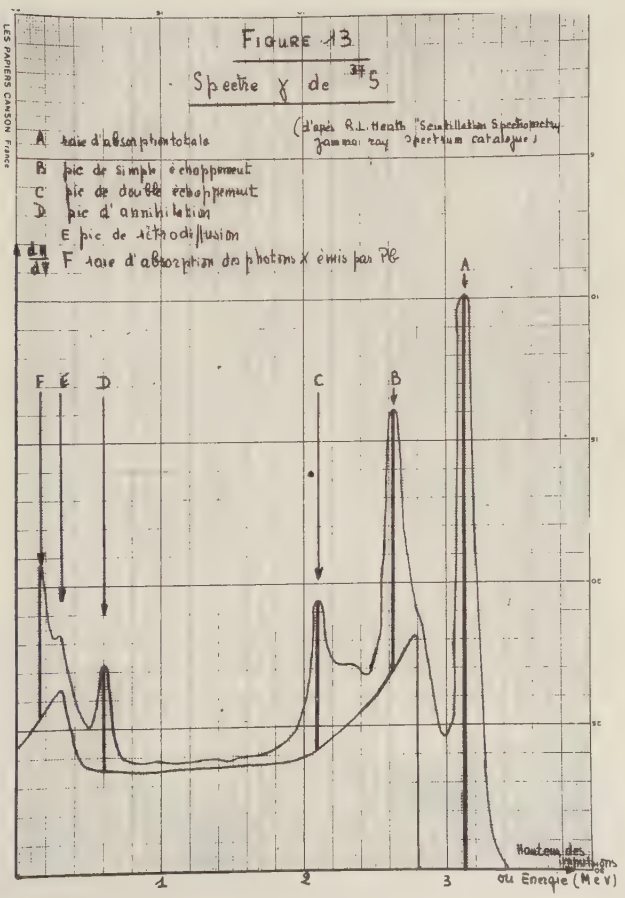
$V-V_D$: raie d'échappement d'un photon γ de 0,5II M.e.v

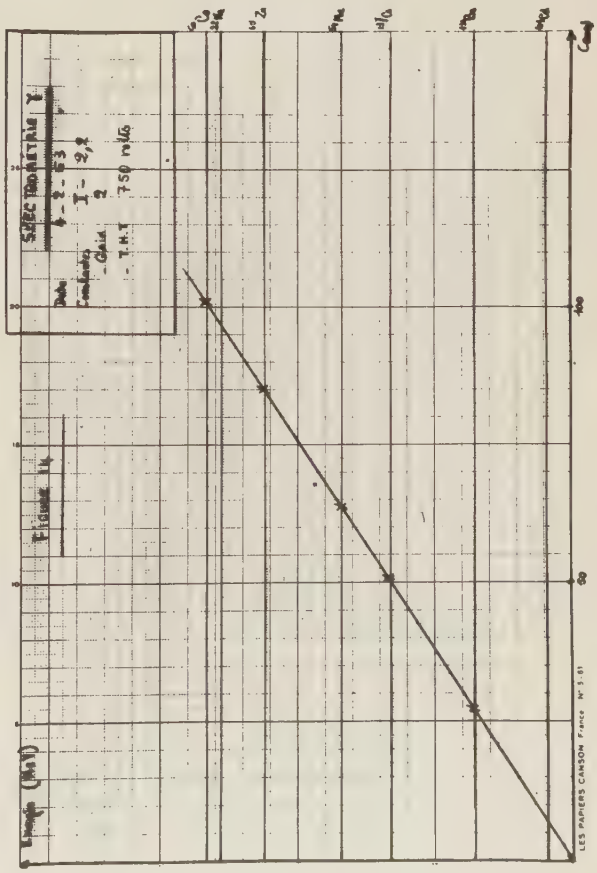
$V-2V_D$:raie d'échappement de deux photons γ de 0,5II M.e.v

V_D :raie d'annihilation

R : pic de rétrodiffusion

X :raie d'absorption des photons X émis par Pb.





pent de celui-ci et rencontrent le scintillateur sur leur trajet, lui cédant leur énergie.

Ainsi, le pic de rétrodiffusion R qui apparait dans tous les spectres est dû à l'absorption par effet photoélectrique dans le cristal du photon γ qui a subi une diffusion de 180°. L'énergie correspondante à ce pic est caractéristique du rayonnement γ considéré. Elle est donnée par la formule

$$E_{rét} = h\nu_o - \hat{E}_{compton}$$

Dans l'exemple choisi, elle est égale à 0,220 Mev et le pic se situe dans le canal 11.

3 - par effet de paire. Les photons d'annihilation produits s'échappent et s'absorbent dans le scintillateur. Il apparait alors un pic correspondant à une énergie de 0,511 Mev. C'est le pic dit d'annihilation V_D.

Le spectre d'absorption des photons γ de 1,800 Mev établi plus haut est complété comme le montre la FIGURE I2.

On peut remarquer que ces raies parasites provenant de la diffusion de certains photons $h\nu_o$ perturbent essentiellement la distribution Compton du spectre alors que la raie d'absorption totale n'est pas atteinte. Ce fait est important car il permet de comprendre pourquoi, nous le verrons plus loin, il est préférable d'effectuer la détermination de l'efficacité de comptage d'un détecteur uniquement au niveau des raies d'absorption totale.

3.2.3. Les spectres que nous venons de décrire sont théoriques : en pratique, ils n'apparaissent pas ainsi, car les raies ne sont jamais aussi bien définies.

En effet, l'émission des photons γ, les scintillations lumineuses, l'émission photoélectrique de la photocathode et l'émission d'électrons secondaires par les dynodes sont des phénomènes aléatoires qui introduisent des fluctuations autour de la valeur moyenne et entrainent un élargissement des raies rencontrées dans le spectre théorique.

Nous donnons, à titre d'exemple, le spectre théorique et le spectre réel du rayonnement γ monoénergétique émis par ^{37}S (3,130 Mev). Le cristal scintillant utilisé est un cristal INa(Tl) de 3 × 3 pouces. (FIGURE 13)

Il est à remarquer que l'aspect du spectre réel d'un rayonnement γ monoénergétique, c'est à dire

l'importance respective des différentes raies, comme l'apparition de pics parasites dépend beaucoup de l'ensemble de comptage considéré : forme et dimension de la source, sa distance au compteur, les dimensions du scintillateur, les caractéristiques du spectromètre γ, l'épaisseur et la nature du blindage utilisé.

4. Chaque rayonnement γ monoénergétique est donc caractérisé par son spectre que l'on peut considérer comme formé de deux parties :

1 - la raie d'absorption totale de forme approximativement gaussienne, se détachant généralement bien.

2 - la distribution Compton aux limites mal définies car perturbées par des raies provenant de phénomènes secondaires de diffusion : photons X, rétrodiffusion et dans le cas de photons γ d'énergie supérieure à 1,020 Mev, raies d'échappement, raie d'annihilation.

La spectrométrie γ peut être utilisée toutes les fois que l'on a à étudier un ou plusieurs radioéléments, émetteurs γ.

La localisation sur l'axe des abscisses de raies photoélectriques permet de déterminer l'énergie des rayons γ détectés et par conséquent d'identifier les éléments responsables de leur émission.

D'autre part, l'importance de chacune des raies ou mieux dans un spectre expérimental leur surface est directement proportionnelle au nombre de photons initiaux qui ont réagi dans le cristal : ceci constitue l'aspect quantitatif de la spectrométrie γ.

Avant d'appliquer ces principes, il est néanmoins nécessaire de réaliser certaines déterminations préalables.

4.1. L'étalonnage de l'ensemble de comptage en énergie en est une primordiale. En effet, le rôle du spectromètre est de choisir et de classer les impulsions en fonction de leur hauteur. Si l'on veut affecter à chaque raie d'un spectre une certaine énergie, il faut connaître la relation liant l'énergie des photons absorbés dans le cristal et la hauteur des impulsions correspondantes.

On utilise pour cela certains radioéléments émettant chacun un rayonnement γ mono ou biénergétique connu avec précision. Leur spectre ne comprend qu'une

ou deux raies d'absorption totale. L'emplacement de ceux-ci sur l'axe des abscisses permet de construire la courbe d'étalonnage : hauteurs des impulsions électriques en fonction de l'énergie des photons absorbés.

Les radioéléments employés sont par ordre croissant d'énergie le ^{133}Ba, ^{113}Sn, ^{137}Cr, ^{54}Mn, ^{65}Zn et ^{60}Co auxquels on adjoint parfois ^{109}Cd et ^{22}Na.

Cette courbe d'étalonnage doit être dans les limites d'énergie considérée, une droite, car en principe les hauteurs des impulsions électriques sont proportionnelles aux énergies.

Il est nécessaire de vérifier cette proportionnalité souvent car l'ensemble de comptage peut perdre sa linéarité ou présenter le phénomène de dérive. Celle-ci qui peut atteindre plusieurs canaux, se manifeste quelquefois par un décalage du zéro, le plus souvent par un changement de gain de l'analyseur. Ces manifestations sont très gênantes lorsqu'elles se produisent au cours des mesures qui perdent dès lors toute exactitude.

4.2. On a vu que les multiples phénomènes aléatoires qui se succèdent dans la détection des rayons γ font que les raies des spectres présentent une certaine largeur. Ce phénomène est gênant : il constitue un facteur limitant dans la résolution du système de comptage. En effet, deux raies d'énergie voisine ne peuvent être différenciées l'une de l'autre et par suite identifiées que si leur élargissement n'est pas trop important. Dans le cas contraire, elles ne forment plus qu'une raie large et non utilisable. C'est pourquoi, avant d'entreprendre des mesures avec un certain ensemble de comptage il est nécessaire de connaître sa résolution.

On mesure pour cela la largeur relative à mi-hauteur de différentes raies d'absorption totale correspondant à des photons γ d'énergie variée. On utilise les mêmes éléments que précédemment.

La résolution d'un détecteur est d'autant meilleure que la largeur à mi-hauteur déterminée sur chaque raie d'absorption totale est plus petite.

En principe, par suite de la proportionnalité existant entre énergie et hauteur des impulsions, la largeur de la raie varie comme la racine carrée de l'énergie.

KELLEY et ses collaborateurs ont montré que cette relation n'était pas toujours vérifiée. IREDALE a confirmé ce point de vue et utilise dans ses travaux

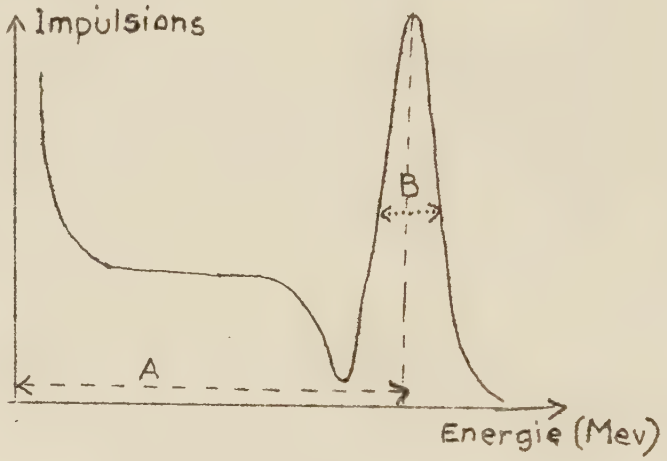
une relation empirique entre largeur de la raie et énergie.

Tout récemment, enfin, De SOETE et J. HOSTE ont trouvé que pour des énergies des photons γ comprises entre 100 Kev et 2 Mev le carré de la résolution (%) est une fonction linéaire de l'inverse de la racine carré de l'énergie en Mev.

Naturellement cette relation doit être vérifiée pour chaque ensemble de comptage. La connaissance de la résolution est d'un très grand intérêt dans le dépouillement des spectres complexes.

$$\text{Résolution} = \frac{B}{A}$$

$$\text{Résolution en \%} = \frac{B \times 100}{A}$$



4.3. Comme dans toute mesure de radioactivité, il est indispensable de connaître l'efficacité de comptage de l'ensemble de détection dans les conditions expérimentales choisies.

Cette efficacité varie en fonction de l'énergie des photons γ étudiés. Il est possible de la déterminer par le calcul avec une grande exactitude. Cette méthode est néanmoins assez délicate. Elle exige de connaître la section efficace de l'INa(Tl) et surtout la géométrie source détecteur. De tels calculs ont été faits par de nombreux auteurs, en particulier REGORS, MARSDEN et HEATH, dans le cas d'une source ponctuelle et d'une source étendue localisée dans l'axe du détecteur.

Un procédé plus empirique est utilisé la plupart du temps. Il consiste à mesurer la réponse du détecteur employé à une série de sources radioactives émettant chacune un rayonnement γ monoénergétique. L'interpolation graphique entre les différents points obtenus permet d'obtenir l'efficacité de l'ensemble de comptage pour n'importe quelle énergie. Les sources

soigneusement étalonnées par la détermination de leur activité β au compteur 4π sont constituées par les radioéléments déjà vus dont le schéma de désintégration est bien connu.

En pratique, on détermine l'efficacité de comptage au niveau des raies d'absorption totale. Nous avons vu en effet, que tout spectre se compose de 2 parties :

- la raie d'absorption totale, de forme bien définie, non influencée par les différents phénomènes de diffusion et dont la surface est directement proportionnelle au nombre de photons γ émis.

- le spectre Compton continu auquel viennent s'ajouter différentes raies parasites. Celles-ci contribuent à lui donner des limites peu précises.

Cette seconde partie est pour cela considérée comme un "indésirable" bruit de fond qui peut masquer de plus des raies d'absorption totale situées dans les basses énergies.

Nous appellerons efficacité de comptage ε au niveau d'une raie d'absorption totale le rapport du nombre d'impulsions comptées dans cette raie par unité de temps au nombre de photons γ émis par la source pendant ce temps.

$$\varepsilon = \frac{\text{Impulsions/unité de temps}}{\text{Photons } \gamma\text{/unité de temps}}$$

Une raie d'absorption totale a une forme à peu près gaussienne et sa surface, exprimée en impulsions par unité de temps, se détermine facilement, sauf en de rares exceptions : (2 raies non parfaitement résolues) par planimètrie ou par calcul. Dans ce dernier cas on admet que sa surface S est assimilable à celle d'un rectangle, à un coefficient près K que l'on introduit pour tenir compte de la légère assymétrie de la courbe du côté des basses énergies.

$$S = K \cdot h \cdot l$$

h = hauteur maximum de la raie d'absorption totale exprimée en impulsions/unité de temps.

l = largeur à mi-hauteur de la raie d'absorption totale

K = 1,07

L'efficacité de détection peut être déterminée de cette façon pour toutes les sources étalons que nous avons citées plus haut. A partir des résultats obtenus, on peut tracer la courbe de l'efficacité en fonction de l'énergie des photons. Celle-ci est très utile lors de l'étude quantitative des spectres complexes. Elle permet de connaître la contribution de chaque rayonnement γ à la détection globale.

4.4. Enfin, le bruit de fond de l'ensemble de comptage doit être connu avec précision. Dans de nombreux cas, il conditionne l'activité limite qui peut être détectée de façon satisfaisante.
Nous avons déjà cité une de ses causes quand nous avons étudié les propriétés des photomultiplicateurs : ceux-ci nous l'avons vu, ont toujours un bruit de fond dû aux particules ionisantes parasites (rayonnement cosmique absorbé dans les matériaux légèrement fluorescents du tube, radioactivité du verre contenant ^{40}K) et surtout aux électrons thermoioniques émis par la photocathode.

Le cristal d'INa(Tl) contribue également à ce mouvement propre par le potassium qu'il contient mais ce sont surtout les photons γ émis au voisinage du détecteur, qui interviennent. Leurs principales origines sont :

- les rayonnements cosmiques.

- la présence dans les matériaux de construction comme dans les blindages d'isotopes naturels radioactifs des familles de l'uranium, du thorium et du radium.

- les radiations provenant de sources préparées ou administrées, présentes dans la pièce où s'effectuent les mesures.

De ceci il découle que tout détecteur, non exposé directement au rayonnement γ émis par un élément radioactif, délivre des impulsions : celles-ci ont une hauteur variable et leur nombre dépend des caractéristiques de l'ensemble de comptage. Il est néanmoins toujours plus important du côté des basses énergies. A ceci, deux raisons :

- les efficacités des scintillateurs sont très élevées pour les photons peu énergiques.

- les rayons γ émis par les différentes sources vues plus haut réagissent avec les matériaux environnant l'ensemble de comptage avant de frapper le cristal d'INa(Tl) qui n'absorbe donc qu'une partie de leur énergie.

La grosseur du cristal d'INa(Tl) intervient également dans l'importance et la nature du bruit de fond.

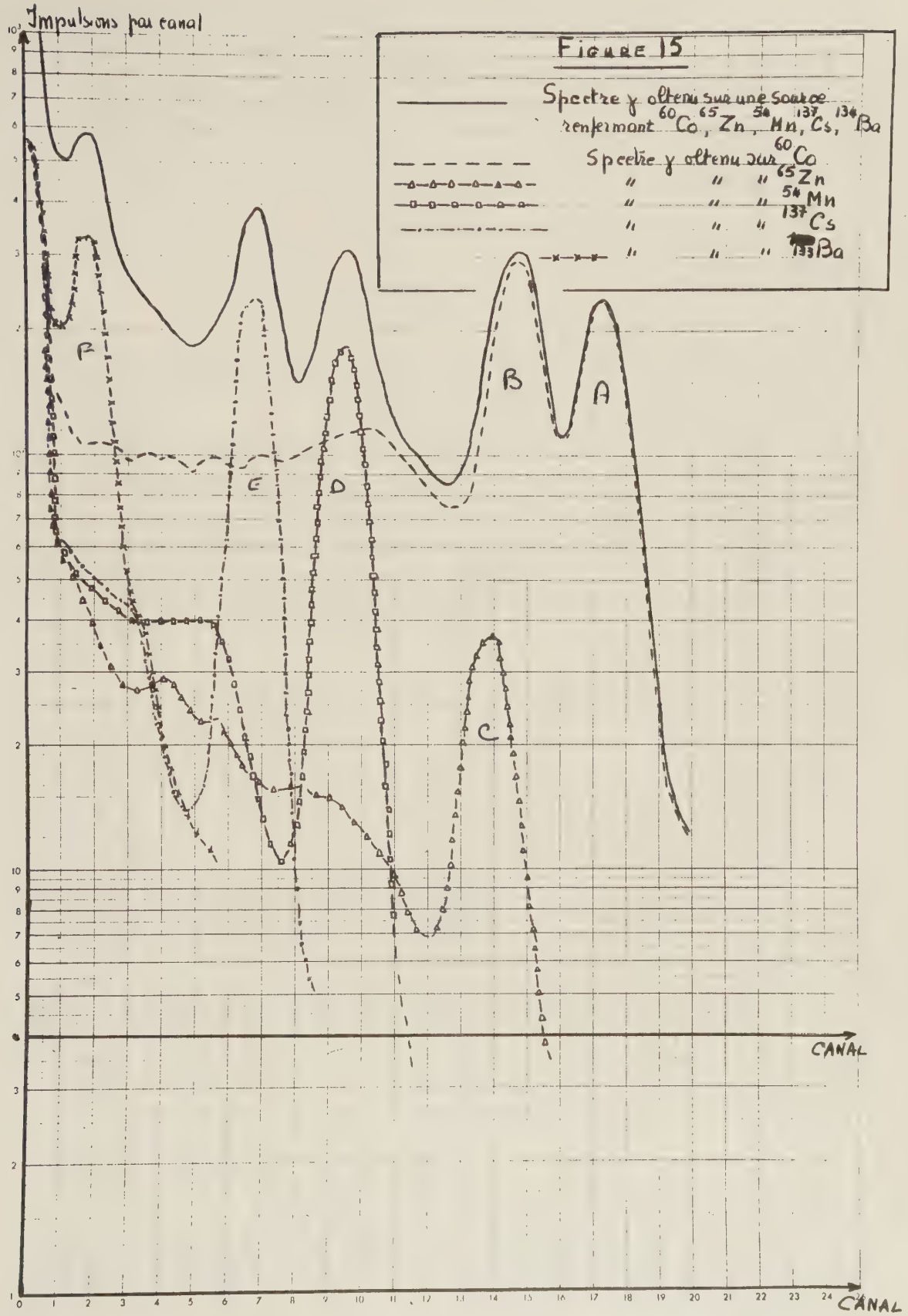
- il est d'autant plus important que le scintillateur est plus gros. Cependant, si l'on fait le rapport des taux de comptage de celui-ci enregistrés pour un gros et un petit cristal et le rapport des volumes de ces deux cristaux on constate généralement que le premier rapport est inférieur au second.

- les gros cristaux, par suite de leur efficacité, montrent une diminution beaucoup moins importante du taux de comptage des photons γ d'énergie élevée que les petits. Ceci est dû à leur pouvoir d'arrêt bien plus grand.

Les rayons γ parasites d'énergie élevée peuvent être complètement absorbés par un gros scintillateur et par suite ne pas gêner l'interprétation des régions de basse énergie des spectres.

En conclusion, avant d'entreprendre des mesures par spectromètrie γ il faut déterminer au préalable le spectre du bruit de fond, l'efficacité et la résolution du système de comptage.

Tous ces facteurs doivent être connus avec précision si l'on veut que les résultats aient quelque valeur.


Impulsions par canal
FIGURE 15
Spectre γ obtenu sur une source renfermant 60Co, 65Zn, 54Mn, 137Cs, 134Ba
Spectre γ obtenu sur 60Co
" " " 65Zn
" " " 54Mn
" " " 137Cs
" " " 133Ba
A
B
C
D
E
F
CANAL
CANAL

CHAPITRE III

Analyse qualitative et quantitative d'un mélange de radioéléments par spectrométrie γ.

Chaque rayonnement γ monoénergétique, nous venons de le voir, se caractérise par un spectre dans lequel la position de la raie d'absorption totale dépend de l'énergie des photons incidents et dont la surface est directement proportionnelle à l'activité de la source.

Lorsque l'on étudie à l'aide d'un spectromètre γ un mélange de photons γ d'énergie différente, la distribution observée est très différente et beaucoup plus complexe. Elle correspond à la somme des distributions propres à chaque rayonnement monochromatique. Nous donnons, à titre d'exemple, dans la FIGURE I5, le spectre que nous avons obtenu avec une source comprenant ^{60}Co, ^{65}Zn, ^{54}Mn, ^{137}Cs, ^{133}Ba. Comme on peut le voir, seule la raie A de plus grande énergie (1,330 Mev) est bien définie car toutes les impulsions dûes à des effets autres que l'effet photoélectrique sont situées au dessous d'elle. Il n'en est pas de même pour les autres raies dont la ligne de base n'est plus située sur l'axe des abscisses. Les distributions Compton de A, B, D, E, perturbent respectivement les raies d'absorption totale de B, D, E, F dont il n'est pas possible de déterminer la surface avec précision. Bien plus, la raie C correspondant à ^{65}Zn, très petite par rapport aux autres et superposée à B, n'apparaît même pas dans la distribution : cet élément ne peut être identifié.

C'est pourquoi, au fur et à mesure que s'étendaient les applications de la spectrométrie γ, d'importants travaux furent réalisés ces dernières années en vue de résoudre le problème du "dépouillement des spectres complexes".

Les recherches ont porté :

- d'une part sur la mise au point de dispositifs permettant l'élimination systématique de certaines raies ou distributions (Compton essentiellement).

- d'autre part, sur l'établissement de méthodes par lesquelles il est possible de travailler directement sur les spectres complexes obtenus.

1. Simplification des spectres complexes.

Ceux-ci sont formés à partir d'impulsions électriques de hauteur variable suivant les phénomènes qui leur ont donné naissance : mouvement propre de l'ensemble de comptage, effet photoélectrique, effet Compton effet de paire, que ceux-ci aient lieu dans le cristal scintillant ou dans les matériaux environnants. Le résultat est l'apparition, nous l'avons vu, d'un certain nombre de raies (raie d'absorption totale, raie de rétrodiffusion, raie d'échappement et d'annihilation) et de distributions Compton continues. En vue de faciliter l'étude de ces spectres on tend à les simplifier en ne conservant que les impulsions électriques provenant d'un phénomène défini.

C'est ainsi que l'on réduit au minimum le bruit de fond de l'ensemble de comptage. On utilise pour cela un blindage approprié et un détecteur sélectionné.

Pour éviter la détection de rayons X, très pénétrants, provenant d'interaction des γ avec le plomb du blindage, on recouvre celui-ci d'une mince feuille de Cadmium et de Cuivre. Ce procédé, préconisé par HEALTH R.L., est efficace.

Il est possible également de diminuer l'importance des raies de rétrodiffusion en jouant sur la position de la source vis à vis du compteur.

La suppression des distributions Compton a fait l'objet de différents travaux. Le procédé le plus élégant consisterait à utiliser un spectromètre à absorption totale : le gamma incident dépense toute son énergie, quelle que soit sa valeur, dans le scintillateur suffisamment grand pour qu'aucun électron ou photon diffusé ne puisse s'échapper. Cette solution exige l'emploi de très gros cristaux INa(Tl), fragiles, onéreux et de résolution défectueuse. C'est pourquoi en pratique elle ne peut être retenue.

On essaie néanmoins de s'en rapprocher en utilisant des montages en coïncidence ou en anticoïncidence.

Deux détecteurs D_1 et D_2 sont dits montés en coïncidence lorsqu'ils sont réunis à la même échelle de comptage par l'intermédiaire d'un circuit de blocage C. Celui-ci est un ensemble électronique qui ne permet le passage d'une impulsion de D_1 que lorsqu' il reçoit une impulsion de D_2. D_1 sert de "détecteur", D_2 sert de "moniteur".

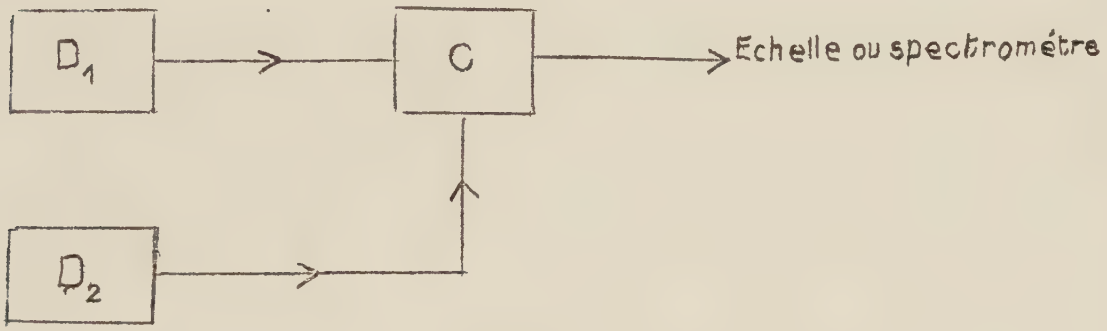


FIGURE 16

Si l'on place une source γ émettrice devant D_1 et D_2, certains photons vont se diriger vers D_1, d'autres vers D_2 ; lorsqu'une scintillation se produit en même temps dans les deux scintillateurs, l'impulsion sortant de D_2 débloque le circuit qui laisse alors passer l'impulsion venant de D_1 en direction du spectromètre qui l'analyse et la compte.

Le montage en anticoïncidence de deux détecteurs se fait de la même façon que la précédente à la différence que le circuit de blocage ne laisse pas passer l'impulsion venant de D_1 quand il reçoit en même temps une impulsion de D_2. Il est à noter que dans ces deux montages, le temps de blocage et de déblocage est suffisamment grand pour que l'efficacité du système reste bonne même si un léger décalage se produit entre les impulsions venant des deux détecteurs. Ce temps dit de coïncidence ou d'anticoïncidence est de l'ordre de 150 μ secondes.

1.1.

1.1.1. La première méthode de mesure des énergies des photons γ par un ensemble de deux détecteurs montés en coïncidence fut proposée par R. HOFSTADTER et J.A. Mc INTYRE.

Elle repose sur le principe suivant : lorsqu'un photon γ, d'énergie $h\nu_o$, réagit dans INa(Tl) par effet

Compton, seule l'énergie E de l'électron de recul apparu sert à la production des flash lumineux si le photon diffusé $h\nu$ s'échappe du cristal. En un mot, la hauteur des impulsions électriques recueillies à la sortie du P.M. est proportionnelle à E qui dépend, elle-même, de l'angle θ que fait la direction du photon diffusé avec celle du photon incident. Pour θ compris entre 135 et 180° le calcul montre que la valeur de E varie peu. C'est pourquoi R. HOFSTADTER et J.A. Mc INTYRE disposent deux sondes de telle sorte que les cristaux d'INa(Tl), D_1 et D_2 fassent entre eux un angle de 150°. D_1, qui constitue le détecteur proprement dit, est situé dans l'axe du faisceau collimaté de photons γ. Lorsqu'un de ceux-ci le rencontre, il peut réagir par effet photoélectrique ou effet Compton. Dans ce dernier cas, il apparait un électron de recul et un photon diffusé. Si celui-ci s'échappe du cristal, avec θ compris entre 135 et 180°, rencontrant D_2 sur son trajet par conséquent, il peut lui céder son énergie. Dans ce cas seulement, apparaissent en même temps deux flash lumineux. Le circuit de coïncidence est débloqué par D_2 et l'impulsion venant de D_1 parvient au spectromètre qui l'analyse et l'enregistre.

La distribution obtenue se compose donc d'impulsions ayant toutes la même énergie car produites par le même phénomène : effet Compton avec angle de diffusion déterminé. De la raie produite il est facile de déterminer l'énergie $h\nu_o$ des photons incidents si l'on a pris soin d'étalonner au préalable le spectromètre dans les conditions expérimentales choisies.

Ce dispositif convient aussi bien pour les sources qui sont le siège de plusieurs rayonnements monochromatiques : dans ce cas, le spectre est formé de plusieurs raies distinctes.

Les auteurs ont étudié par ce dispositif les spectres énergétiques des photons γ émis par ^{60}Co, le Ra C et ^{124}Sb. Les résultats sont excellents mais l'on doit néanmoins signaler que l'efficacité de détection est faible puisque l'on ne compte qu'une très faible fraction des photons γ du faisceau incident.

D'autre part, ces auteurs ont observé l'apparition, dans le spectre, d'une raie supplémentaire, dûe à l'effet de paire, lorsque l'énergie des photons incidents est supérieure à 1,02 Mev.

Ceci leur suggère de n'envisager que cette raie en ajoutant à leur dispositif un troisième détecteur D_3 placé dans le prolongement des deux autres comme l'indique la FIGURE I8.

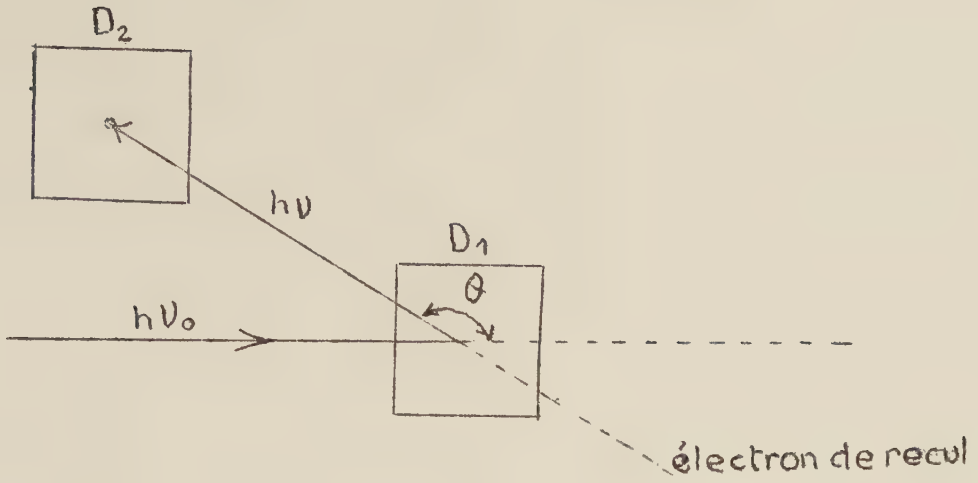


FIGURE 17

Dispositif décrit par HOFSTADTER R., et Mc INTYRE J.A.

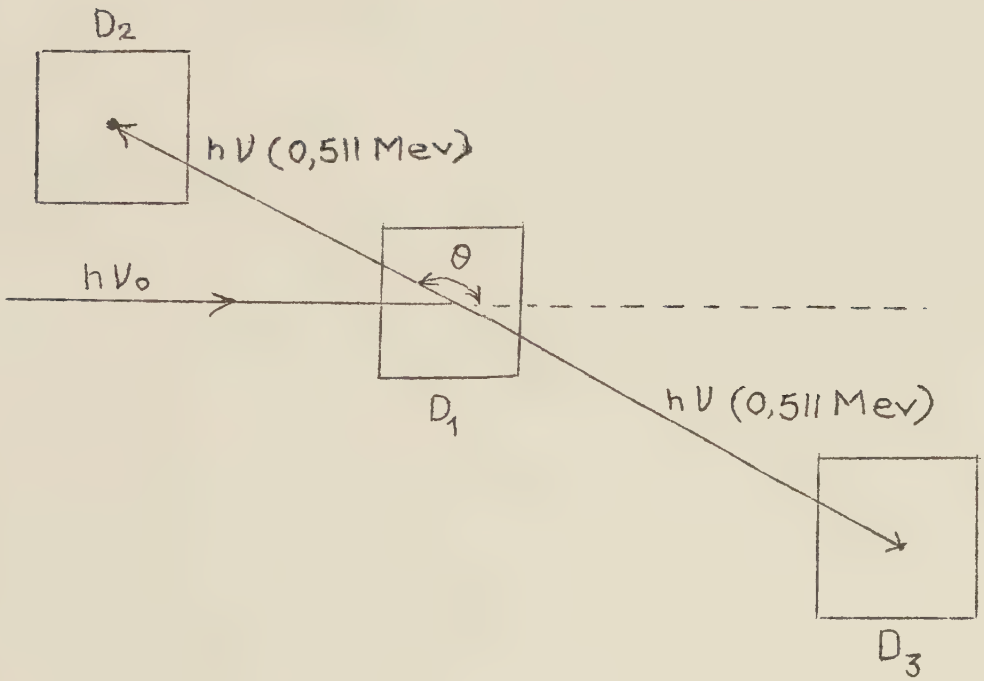


FIGURE 18

Dispositif décrit par BAIR J.K., et MAIENSCHEIN F.C.
(1.1.2.1.)

1.1.2. C'est ce que firent J.K. BAIR et F.C. MAIENSCHEIN.

1.1.2.1. D_1, D_2, D_3 sont montés en coïncidence. Pour qu'une impulsion de D_1 parvienne au spectromètre, il est nécessaire qu'un flash lumineux apparaisse en même temps dans D_2 et D_3.

Ceci est réalisé uniquement dans les conditions suivantes :

- un photon du faisceau incident réagit dans D_1 par effet de paire.

- les photons γ d'annihilation produits s'échappent tous les deux de D_1 et cèdent leur énergie à D_2 et D_3.

Le spectromètre ne reçoit donc que des impulsions correspondant à un seul phénomène (effet de paire) et toutes de même hauteur. Le spectre est là aussi constitué d'une seule raie par rayonnement monochromatique.

1.1.2.2. Ce dispositif offre une autre possibilité lorsque D_1 est monté en coïncidence avec D_2 et en anticoïncidence avec D_3. On ne compte que les impulsions provenant d'effet Compton dans D_1 avec absorption du photon diffusé dans D_2.

On obtient donc le même résultat qu'avec le montage de R. HOFSTADTER mais on supprime de plus les impulsions parasites dûes aux effets de paire dans D_1.

1.2. Les ensembles de comptage, montés en anticoïncidence, permettent de compter exclusivement, à l'opposé des précédents, les impulsions correspondant à l'absorption totale des photons γ dans le cristal, toutes les autres étant éliminées.

Les dispositifs préconisés sont nombreux mais la diversité des montages tient surtout au fait qu'ils doivent s'adapter parfaitement aux échantillons à mesurer.

1.2.1. R.A. ALBERT a décrit en 1952 un appareil dans lequel le détecteur primaire D_1 est entouré aussi complètement que possible par un autre détecteur D_2. Celui-ci est constitué par six cristaux d'INa(Tl) vus par trois photomultiplicateurs. Toutes les radiations incomplètement absorbées par D_1 s'échappent de celui-ci et peuvent être détectées par D_2.

D_1 et D_2 étant montés en anticoïncidence, seules les impulsions provenant de l'absorption totale des

photons dans le détecteur primaire seront comptées et analysées par le spectromètre. On supprime ainsi toute la distribution Compton.

1.2.2. Un dispositif assez voisin a été mis au point par J. MALE, J. MILLER, C.G. SCHUHL et C. TZARA du C.E.N. de Saclay. Un détecteur primaire D_1 est monté en coïncidence avec trois autres D_2, D_3, D_4 de sorte que toute impulsion de D_1 en coïncidence avec une impulsion des autres voies ne peut être comptée.

1.2.3. Des auteurs italiens C.MANDUCHI, G. NARDELLI et M.T. RUSSO-MANDUCHI ont adopté un procédé qui diffère des précédents uniquement par le fait que le détecteur primaire INa(Tl) est entouré par un gros cristal de plastique (36 cm de diamètre et 29 cm de hauteur) vu par six photomultiplicateurs.

Les spectres obtenus sont, là aussi, débarassés de leur distribution Compton : il ne subsiste que les raies d'absorption totale, les raies de rétrodiffusion et éventuellement d'annihilation.

Comme nous l'avons dit, toutes les méthodes qui utilisent des montages en anticoïncidence sont comparables ; moins élégantes peut-être selon leurs auteurs que celle d'HOFSTADTER, elles présentent l'avantage sur celle-ci de permettre une meilleure efficacité géométrique sans pour autant affecter la résolution. Nous pensons qu'elles peuvent être appliquées avec succès dans l'analyse de mélange de produits de fission.

1.2.4. Un dernier appareil, enfin, décrit par PIERSON doit être signalé : voisin du précédent par ses deux détecteurs, l'un à INa(Tl) D_1, l'autre à anthracène D_2, il en diffère par le fait que D_1 et D_2 ne sont pas montés en anticoïncidence mais comptent séparément l'un après l'autre la source γ émettrice. Avec D_1 on obtient le spectre complexe ordinaire tandis que D_2 ne détecte que les différentes distributions Compton.

Il suffit de retrancher le résultat donné par D_2 de celui de D_1 pour que chaque rayonnement γ monoénergétique de la source soit représenté dans la distribution uniquement par sa raie d'absorption totale. Notons que dans ce cas, la soustraction des impulsions est statistique donc valable uniquement pour des taux de comptages élevés, alors qu'elle se faisait instantanément sur chaque impulsion dans les méthodes décrites précédemment.

Nous avons vu un de ces appareils en fonctionnement au Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble. Les

résultats semblent être très satisfaisants, à la condition que les deux compteurs soient bien étalonnés en énergie et en intensité de détection pour que les distributions Compton données par chacun d'eux soient comparables en amplitude et en étendue.

2. Etude directe des spectres complexes.

2.1.

2.1.1. Parmi toutes les méthodes que nous allons maintenant étudier, la plus largement utilisée est celle décrite par R.E. CONNALY sous le nom de méthode par "soustractions successives". Elle est d'un emploi très général puisque c'est la seule, nous le verrons qui s'applique aussi bien à l'étude de mélange connus ou inconnus d'émetteurs γ. Son principe est le suivant : dans un spectre complexe, seul la raie d'absorption totale correspondant au rayonnement γ le plus énergétique n'est pas perturbée. Sa localisation sur l'axe des abscisses et sa surface permettent de déterminer l'énergie des photons γ monoénergétiques qui lui ont donné naissance de même que leur nombre dans le flux incident.

On est alors en possession de toutes les données pour construire toute la distribution spectrale de ce rayonnement dont la soustraction du spectre complexe fait apparaitre la raie la plus voisine.

La ligne de base de cette deuxième raie d'absorption totale, située auparavant au dessus de l'axe des abscisses, se trouve ramenée sur celui-ci et son analyse qualitative et quantitative est possible : on revient au cas précédent.

En procédant ainsi par soustractions successives, on décompose le spectre complexe en ses différents constituants, ce qui permet en fin de compte de définir dans un mélange d'émetteurs γ leur identité et leur proportion respective.

L'emploi valable de cette méthode nécessite la connaissance de certains facteurs limitants :

1 - les raies d'absorption totale sur lesquelles reposent toute l'analyse doivent être résolues avec précision, sinon de grosses erreurs d'interprétation sont possibles. Il est donc nécessaire de s'assurer de la pureté des raies observées. La dispersion des hauteurs d'impulsions dûes à l'absorption totale des photons γ dans le cristal obéit largement, nous l'avons vu, à une dispersion de GAUSS. Inversement, la réalisation d'une

répartition normale (Gaussienne) est un critère de la pureté d'une raie c'est à dire de son caractère monoénergétique. Il suffit donc en principe de comparer les valeurs expérimentales avec celles de la fonction de distribution normale. Si celles-ci concordent, on peut appliquer la méthode ; dans le cas contraire, la raie est perturbée par la présence soit de bremstrahlung continus, soit d'un pic d'intensité moindre mais de plus haute énergie. Il s'agit d'identifier le phénomène perturbateur et d'en tenir compte avant de poursuivre l'analyse.

2 - les soustractions successives sont réalisées sans grossières erreurs si l'on dispose d'un catalogue des spectres simples des différents radioéléments constituant le mélange, obtenus avec l'ensemble de comptage utilisé pour l'étude des distributions complexes. Il est néanmoins nécessaire de vérifier que les qualités du spectromètre sont restées identiques à elles-mêmes pour toutes les mesures : pouvoir de résolution, étalonnage en énergie etc...

Si l'un des spectres simples fait défaut il est nécessaire de le construire par le calcul. Pour cela, on dispose de certains points de repère : lorsque la raie d'absorption totale correspond à une énergie inférieure à 1,020 Mev, on peut calculer selon les formules données plus haut, le pic correspondant à la rétrodiffusion des photons γ et les limites de la distribution Compton ; lorsque l'énergie est supérieure à 1,500 Mev il faut tenir compte des pics de paire ($h\nu$ - 0,511 Mev; $h\nu$ - 1,02 Mev) et de la raie d'échappement.

Ce procédé n'est pas très rigoureux et l'on préfère établir la distribution de diffusion à partir d'un spectre dont la raie d'absorption totale est située le plus près possible de celle que l'on analyse : la distance entre les 2 raies doit être inférieure à 100 Kev. Même dans ce cas, l'interprétation est subjective dans l'unification des variations statistiques des mesures comme dans l'interpolation graphique de la fraction diffusée.

Le principal reproche que l'on peut faire à cette méthode est que les erreurs commises dans l'établissement des différents spectres simples se trouvent ajoutées et reportées sur les raies de faible énergie dont la mesure est alors sujette à erreur.

L'auteur considère d'ailleurs que l'on ne peut pas analyser un mélange contenant plus de 5 radioéléments sans étude de décroissance et séparation chimique préalable.

Ce procédé est néanmoins très intéressant et de nombreux auteurs l'utilisent :

2.1.2. A.S. CHHABRA et R.K. HUKKO étudient ainsi les spectres obtenus sur des végétaux contaminés par le "fall-out". Ils sont parvenus à identifier sans difficulté apparente ^{40}K, ^{95}Zr - ^{95}Nb, ^{103}Ru, ^{131}I, ^{140}Ba - ^{140}La, ^{144}Ce - ^{144}Pr et ^{137}Cs.

2.1.3. Il en est de même pour C. SHARP COOK et K.G. VOHRA et coll. ; ces derniers auteurs mesurant la radioactivité dûe au ^{137}Cs dans le lait limitent leur expérience à la différenciation assez simple du spectre de cet élément et de celui du ^{40}K.

2.1.4. Une méthode automatique de soustraction a été décrite par W. LEE. Elle repose sur le principe précédent mais le spectromètre utilisé est capable, grâce à un dispositif spécial, d'accumuler ou d'enlever des impulsions électriques dans les différents canaux.

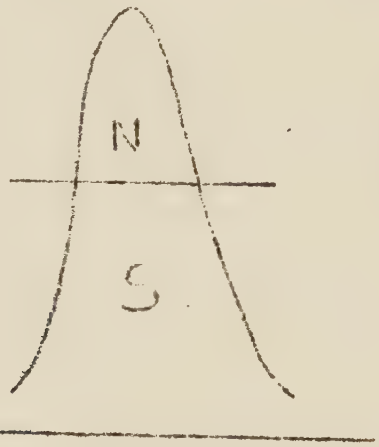
Le mode opératoire suivi est simple : on enregistre tout d'abord le spectre complexe puis on soustrait successivement de celui-ci les distributions simples qui le composent. Ce procédé a l'avantage d'être plus rapide que le précédent mais il ne supprime pas les causes d'erreurs signalées plus haut. Il nécessite de plus d'avoir à sa disposition, pour les mesures, des sources étalons, identiques aux préparations à étudier et renfermant chacune l'un des radioéléments qui composent le mélange.

2.1.5. Signalons, enfin, l'utilisation de plus en plus fréquente de machines arithmétiques qui effectuent directement les soustractions. WEST et JOHNSON d'une part, W.E. KUIKENDALL et R.E. WAINERDI, W.H. HENEVELD et D. BORGHOLTHAUS d'autre part ont décrit un programme adapté à des machines I.B.M. 650 et 704.

2.2. Toutes les autres techniques décrites ont des applications plus réduites car elles nécessitent de connaître l'identité des radioéléments analysés. Elles ne servent que dans l'estimation de l'importance de chacun d'eux.

2.2.1. Mc ISAAC décrit une méthode intéressante, rapide qui n'exige pas l'utilisation de catalogue de spectres. Son principe est le suivant : si l'on trace à travers une raie d'absorption totale une ligne droite parallèle à l'axe des abscisses, la surface N située en dessus de cette ligne est proportionnelle à la surface totale S de la raie et par conséquent à l'abondance du rayonnement γ qu'il représente.

Dans les spectres complexes, l'extrémité supérieure de la plupart des raies photoélectriques apparait nettement. Après avoir déterminé leur identité on peut appliquer cette méthode. Il suffit de déterminer au préalable pour chacun d'eux, dans les spectres simples, la proportionnalité entre N et S et ceci pour différentes valeurs de N.



Par ce procédé, une raie d'énergie déterminée peut être étudiée sans qu'il soit nécessaire de considérer ceux qui la précèdent comme c'est le cas dans la méthode par soustraction. Ceci évite l'accumulation des erreurs d'estimation sur les pics de faible énergie.

2.2.2.1. Ces dernières années, de nouvelles méthodes sont apparues, plus rigoureuses : la contribution de chaque radioélément dans un spectre complexe est déterminée, en effet, par la résolution d'un système d'équations linéaires.

G.R. HAGEE et ses coll. réalisent ainsi le dosage de ^{131}I, ^{137}Cs, ^{140}Ba, ^{40}K dans des échantillons de lait. Analysés au spectromètre, ceux-ci donnent un spectre complexe résultant de la superposition des spectres simples de ces radioéléments. En mesurant au préalable dans les mêmes conditions de géométrie chacun de ces émetteurs γ il est possible de déterminer leur interférence réciproque :

$$G_I = I + C_I C + L_I L + K_I K + B_I \quad (^{131}I) \quad (1)$$

$$G_C = I_C I + C + L_C L + K_C K + B_C \quad (^{137}Cs) \quad (2)$$

$$G_L = I_L I + C_L C + L + K_L K + B_L \quad (^{140}Ba - ^{140}La) \quad (3)$$

$$G_K = I_K I + C_K C + L_K L + K + B_K \quad (^{40}K) \quad (4)$$

dans ces équations :

G_I, G_C, G_L, G_K = activité brute (impulsion/minute) de ^{131}I, ^{137}Cs, ^{140}Ba - ^{140}La, ^{40}K au niveau de leur raie d'absorption totale.

B_I, B_C, B_L, B_K = bruit de fond (impulsion/minute) au niveau de la raie d'absorption totale de ^{131}I, ^{137}Cs, ^{140}Ba - ^{140}La, ^{40}K.

I, C, L, K = activité nette (impulsion/minute de ^{131}I, ^{137}Cs, ^{140}Ba - ^{140}La, ^{40}K au niveau de leur raie d'absorption totale.

C_I = rapport de l'activité (impulsion/minute) dûe à ^{137}Cs dans la raie d'absorption totale de ^{131}I / activité (impulsion/minute) dûe au ^{137}Cs dans la raie d'absorption totale de ^{137}Cs : ainsi, dans le spectre pur du ^{137}Cs, 32 impulsions sont comptées dans la raie d'absorption totale de ^{131}I pour 100 impulsions comptées dans la raie d'absorption totale de ^{137}Cs.

A partir des valeurs expérimentales obtenues par les comptages pour G_I, G_C, G_L, G_K et B_I, B_C, B_L, B_K on peut résoudre les quatre équations et déterminer I, C L, K.

Ce procédé s'applique à n'importe quel mélange de radioéléments à la condition que leur identité et leur spectre simple soient connus avec précision. Leur nombre d'autre part, n'est pas limité mais au fur et à mesure qu'il devient plus important, la résolution des équations est complexe et nécessite l'emploi d'ordinateurs. La méthode n'est alors réservée qu'à certains laboratoires.

Il est à noter, enfin, que cette technique est sujette à la même cause d'inexactitude que la méthode par soustraction. En effet, lorsque l'on détermine l'influence réciproque des spectres les uns sur les autres, on se reporte aux mesures effectuées sur chaque radioélément. Ces mesures sont affectées d'une certaine erreur statistique dont il est difficile de tenir compte dans l'établissement des coefficients C_I, C_L, L_I etc...

Dans ce cas-là, ce n'est plus sur la raie de plus faible énergie mais sur la dernière étudiée que s'accumulent toutes les inexactitudes commises pendant l'analyse.

2.2.2.2. C'est pourquoi l'analyse des spectres par la méthode des moindres carrés nous paraît mieux convenir, surtout lorsque les activités mesu-

rées sur les échantillons sont faibles : ce qui augmente les variations statistiques de comptage.

Le principe de la méthode décrite par L.SALMON est le suivant :

Un spectromètre comprenant n canaux dénommés 1...i...n enregistre le spectre complexe obtenu à partir d'une source comprenant m radioéléments dénommés 1...j...m.

Des sources étalons, d'activité connue, de chacun des émetteurs γ sont comptées dans les mêmes conditions.

Le taux de comptage dans le canal i
- de l'étalon j est a_{ij}
- du mélange est b_i

Si le rapport de l'activité inconnue de j dans le mélange à celle de l'étalon j est x_j on peut écrire :

$$b_i = \sum_{j=1}^{m} a_{ij}x_j + Z_i \qquad (1)$$

Z_i est l'erreur statistique faite dans la mesure de b_i

La probabilité pour que Z_i soit précisément la correction à apporter aux n équations à m inconnues pour les rendre compatibles est proportionnelle à e^{-S}, avec $S = Z_i^2$.

Cette probabilité sera maximum lorsque S est minimum. On a donc m équations du type $\frac{dS}{dxj} = 0$ numérotées 1...K...m, avec

$$S = \sum_{i=1}^{n} Z_i^2 = \sum_{i=1}^{n} \left(b_i - \sum_{j=1}^{m} a_{ij}x_j \right)^2 \qquad (2)$$

S est minimisé par l'équation différentielle de x_j et par l'égalisation à zéro. On obtient alors une série de "m" équations 1...K...m de la forme :

$$\sum_{j=1}^{m} x_j \sum_{i=1}^{n} a_{ik}a_{ij} = \sum_{i=1}^{n} a_{ik}b_i \qquad (3)$$

Si les équations (3) sont écrites sous la forme matricielle : $Ax = y$, la solution est alors :

$$x = A^{-1}y$$

Ainsi on peut calculer par cette méthode l'importance relative des différents éléments constituant un spectre complexe : les erreurs statistiques étant réduites au minima car toute appréciation subjective est éliminée.

Pour la résolution des équations, il est nécessaire néanmoins de disposer encore d'ordinateurs dont on prévoit le programme par l'intermédiaire de cartes perforées.

L. SALMON a comparé les résultats obtenus par la méthode qu'il décrit et par celle de CONNALY. Il note que pour des taux de comptage relativement élevés, l'exactitude est la même dans les deux procédés mais dans la mesure d'activité faible, la méthode des moindres carrés est bien supérieure à la méthode par soustraction.

2.2.2.3. D'autres techniques du même genre ont été décrites. Elles reposent sur la résolution d'équations simultanées mais sans l'aide du calcul des moindres carrés.

Citons celles de H.M. CHILDERS, C.Q. GILBERT, R.T. JULKE et coll. et du Technical Department de WINDSCALE qui réalise de cette façon la détermination de ^{103}Ru, ^{106}Ru, ^{137}Cs, ^{95}Zr - ^{95}Nb et ^{144}Ce dans des échantillons de sel de mer.

Telles sont les différentes méthodes utilisées dans l'étude des spectres complexes. Le choix des modes opératoires est surtout fonction du problème à traiter. Il dépend beaucoup :

- de la source de rayonnements γ : son activité sa présentation c'est à dire sa surface ou son volume.
- des appareils dont on dispose.

DEUXIEME PARTIE

CHAPITRE I

Position du problème
Analyse des travaux antérieurs

1.1. Position du problème

Nous nous proposons dans ce travail, d'effectuer l'analyse qualitative et quantitative de traces de radioéléments dissous dans l'eau.

La présence dans celle-ci d'isotopes radioactifs a plusieurs origines possibles.

- Citons tout d'abord les nuclides naturels : ^{40}K dans toutes les eaux, mais à des concentrations bien trop faibles pour présenter quelque danger ; Radium et surtout radon dans certaines eaux de source dont l'activité, parfois, n'est pas négligeable.

- La retombée radioactive, dûe aux explosions nucléaires, participe également à la polution de l'eau. Son importance ainsi que la nature des produits de fission que l'on risque de trouver dépendent essentiellement de l'intervalle de temps écoulé entre l'explosion nucléaire et le prélèvement de l'eau.

- L'origine la plus importante est néanmoins le rejet dans les eaux qui serviront ultérieurement aux besoins de l'homme de radioéléments provenant :

pour une faible part : de l'industrie qui les utilise de plus en plus fréquemment, des laboratoires scientifiques et des hopitaux (applications au diagnostic et au traitement de certaines maladies.)

surtout des Centrales Nucléaires qui doivent se débarasser régulièrement de solutions actives renfermant

un certain nombre de produits de fission. En effet, dès leur sortie du réacteur, les barres d'uranium irradié sont stockées pendant un certain temps, dit de refroidissement, avant d'être traitées. Après cette période, 3 mois environ, il ne subsiste que des éléments à longue vie. Ceux-ci ne sont pas tous rejetés : par différents procédés (précipitations chimiques essentiellement) la plupart d'entre eux sont extraits des liquides actifs et conservés sur le site jusqu'à ce que leur activité ait diminué. Les efflu ents ne contiennent en définitive qu'un petit nombre de radioéléments qui ont échappé partiellement ou totalement aux agents de décontamination employés. Ce sont principalement ^{144}Ce - ^{144}Pr, ^{95}Zr - ^{95}Nb, ^{103}Ru, ^{106}Ru - ^{106}Rh et en petites quantités ^{137}Cs et ^{90}Sr - ^{90}Y, tous émetteurs γ à l'exception de ^{90}Sr - ^{90}Y.

Notons qu'à l'exception des eaux de source qui renferment toujours les mêmes nuclides, il n'est pas possible de prévoir, à priori, dans les autres cas de pollution d'une eau, la nature et le nombre exact des radioéléments qui la contaminent. Prenons l'exemple d'un fleuve recevant régulièrement des effluents d'une centrale nucléaire : à ceux-ci qui ont une composition relativement constante dans le temps, s'ajoutent divers produits de fission apportés par la retombée dont l'importance dépend souvent en fin de compte des conditions atmosphériques. A un degré moindre, l'industrie comme les hopitaux peuvent se débarasser dans celui-ci de déchets radioactifs très variés.

D'autre part, les rejets, quel que soit l'organisme public ou privé qui les effectue, doivent avoir une composition telle que déversés dans une eau de fleuve, ils lui confèrent une concentration en radioéléments inférieure aux C.M.A.P. en vigueur. Celles-ci, nous l'avons vu, sont très faibles et le role d'un service de protection est justement de vérifier que ces conditions soient respectées.

Les deux plus importants problèmes que nous avons à résoudre dans ce travail sont donc :

- la mise au point d'une méthode permettant de mesurer de très faibles activités sur l'eau.

- la détermination des éléments responsables de la contamination

Ceci nécessite :

- l'étude d'un ensemble de mesure aux qualités bien définies : compteur à bas bruit de fond, possèdant une bonne résolution et une grande efficacité de détec-

tion vis à vis des photons γ émis par la source.

- le choix et l'emploi d'une méthode permettant le"dépouillement" des spectres γ obtenus. Ceux-ci, la plupart du temps, seront assez complexes puisqu'ils seront constitués d'autant de distributions simples qu'il y a de radioéléments dans l'échantillon analysé.

1.2. Nous avons vu, dans la première partie de cet exposé, quelques travaux voisins de celui que nous entreprenons. Il nous faut compléter cette énumération afin de préciser les différents dispositifs de comptage utilisés et les résultats obtenus.

1.2.1. Pour doser dans le lait de très faibles concentrations de ^{137}Cs (quelques pc par litre) K.G. VOHRA et coll. emploient un récipient fixé directement au cristal INa(Tl). Ce récipient peut contenir jusqu'à 40 litres de lait mais sa forme et ses dimensions ne sont pas précisées.

1.2.2. P. GAGLIONE et coll. limitent également leur mesure au ^{137}Cs des laits. L'ensemble de comptage est décrit avec plus de précision : il comprend un récipient cylindrique de capacité variable (100 ml pour l'analyse de résidus secs, 500 ml et même 1 à 2 litres pour les laits liquides) coiffant le détecteur ; le blindage est assuré par une épaisseur de 10 cm de plomb.

1.2.3. C.S. COOK étudie le spectre énergétique des différents rayonnements γ émis par les radioéléments contenus dans les retombées. Il concentre les échantillons (poussières de l'air, eaux de pluie) jusqu'à obtention de résidu de faible volume.

L'analyse des spectres obtenus ainsi que les limites de la méthode ne figurent pas dans l'article.

1.2.4. E.J. STORY et A.W. WALTNR déterminent également par spectrométrie γ la radioactivité des retombées mais opèrent sur les filtres à air employés dans la ventilation des locaux.

1.2.5. A.L. BONI décrit une méthode qui permet la mesure rapide dans l'urine d'un mélange de produit de fission. Ceux-ci sont insolubilisés par addition de phosphate alcalin et sur le précipité on effectue les mesures de l'activité β puis γ globale.

Ce procédé, comme tout comptage sans séparation préalable, a des possibilités réduites qui sont

néanmoins suffisantes la plupart du temps. Ce n'est que dans le cas de fortes activités qu'il est nécessaire d'envisager une identification des éléments.

1.2.6. R.E. BENTLEY et coll. mesurent dans l'eau de boisson ^{131}I et les autres produits de fission. Ils effectuent une concentration par échange d'ions sur résine : 20 litres d'eau sont passés sur DEACIDITE FF' que l'on porte ensuite dans un cristal puits INa(Tl) pour un comptage direct sans élution préalable. Les résultats semblent excellents puisque l'extraction des radioéléments, en particulier du Ruthénium, est de l'ordre de 85 %.

Les auteurs donnent comme limite de sensibilité de la méthode 1,8 $\pm$ 0,2 pc par litre.

1.2.7. Les recherches de R.W. PERKINS retiennent notre attention car les préoccupations de l'auteur sont à peu près les nôtres.

Celui-ci détermine de très faibles concentrations (< C.M.A.P.) de radioéléments dans différents échantillons, en particulier dans l'eau de boisson, sans avoir recours à une concentration préalable.

Pour cela, il utilise un bel ensemble de comptage : gros cristal puits INa(Tl) "vu" par 7 photomultiplicateurs reliés à un spectromètre γ à 256 canaux. Les dimensions du cristal (24 cm de diamètre - 21,3 cm de hauteur), la présence dans celui-ci d'un puits relativement grand (on peut y faire tenir des échantillons de gros volume (jusqu'à 500 cm^3) font que l'efficacité de détection des photons γ est excellente. De plus, le remplacement d'un gros P.M. par 7 petits permet de maintenir une bonne résolution (11,5 % pour la raie de 0,660 MeV : ^{137}Cs).

Dans ces conditions, la limite de détection, déterminée sur un nombre élevé de radioéléments est inférieure d'un facteur 5 aux C.M.A.P.

R.W. PERKINS a pu, grâce à ce dispositif, effectuer des mesures précises de la radioactivité de l'eau de la Rivière Columbia après le rejet d'effluents radioactifs ainsi que de la contamination des végétaux par les retombées.

Son ensemble permet même la détection du potassium que contient une urine normale.

1.2.8. Citons, enfin, les travaux entrepris par A.S. CHABBRA et R.K. HUKKOO d'une part, G.H. HAGEE

et coll. d'autre part, qui travaillant sur des échantillons différents (thé, tabac, blé, poisson pour les premiers, lait pour les seconds) n'en utilisent pas moins un dispositif assez voisin : un récipient cylindrique, de capacité variable suivant l'échantillon à étudier, entoure complètement le cristal INa(Tl) d'assez grandes dimensions. Les résultats, là aussi, sont bons puisque la limite de détection des éléments étudiés se situe aux environs de 10 pc.

2. Travaux personnels

La méthode que nous nous proposons de mettre en oeuvre se résume en deux opérations principales :

- la mesure de la radioactivité de l'eau, directement sur celle-ci sans aucune concentration préalable des éléments, par spectromètrie à l'aide d'un compteur à scintillation relié à un spectromètre γ à 128 canaux.

- l'analyse du spectre obtenu par soustraction des distributions Compton à l'aide d'une sonde à scintillateur plastique reliée également au spectromètre γ.

Plusieurs raisons nous ont guidé dans le choix de ce procédé :

- le contrôle d'une eau doit pouvoir s'effectuer rapidement si l'on veut qu'il ait quelque valeur. La plupart du temps, en effet, on désire savoir dans le délai le plus court si la contamination d'une eau est compatible avec son utilisation.

Une méthode rapide exige toujours une grande simplicité dans sa mise en oeuvre. C'est pourquoi, dans le cas qui nous intérresse, il faut éviter les séparations chimiques des radioéléments qui sont longues et délicates à réaliser.

- les distributions Compton gènent considérablement l'interprétation des spectres complexes. Différents procédés, nous l'avons vu, ont été préconisés soit pour les supprimer soit pour connaitre avec exactitude leur influence : la résolution d'équations simultanées associée à la méthode des moindres carrés conduit à ce résultat. Elle constitue certainement le meilleur procédé que l'on puisse mettre en oeuvre ; il nécessite néanmoins un appareillage dont nous ne disposons pas au laboratoire. Nous avons adopté en fin de compte la technique PEIRSON qui convient, nous semble t'il, au but que nous poursuivons.

La méthode une fois choisie, il a fallu procéder à un certain nombre d'expériences pour préciser les différentes caractéristiques de l'ensemble de comptage. Nous avons été conduit à étudier successivement :

- le détecteur à cristal INa(Tl), sa résolution l'influence des dimensions du scintillateur sur son efficacité de comptage, son bruit de fond.

- la source de rayonnement γ, c'est à dire l'échantillon d'eau ainsi que le récipient destiné à le recevoir, sa forme, son volume, sa disposition vis à vis des détecteurs.

- la protection de cet ensemble contre les rayonnements parasites et la réduction du mouvement propre. Celui-ci conditionne, nous l'avons vu, la sensibilité des mesures.

- le détecteur à plastique scintillant, sa position vis à vis de la source ; les dimensions du scintillateur.

Toutes ces recherches effectuées avec un matériel assez simple et un montage provisoire nous ont permis de mettre en évidence les possibilités ainsi que les limites du dispositif utilisé et d'envisager les modifications nécessaires à la mise au point du mode opératoire définitif.

2.1. Matériels utilisés

Nous disposons d'une sonde à scintillation et d'un spectromètre γ.

2.1.1. La sonde à scintillation est constituée par un cristal INa(Tl) (HARSHAW 6 D 4) de 37,5 mm de diamètre et de 25 mm d'épaisseur couplé à un photomultiplicateur DUMONT type 6292. Elle comprend de plus un préamplificateur linéaire transistorisé de gain 16.

2.1.2. Le spectromètre γ R.C.L. à 128 canaux transistorisé possède certaines caractéristiques essentielles :

2.1.2.1. Cet appareil enregistre, analyse et classe dans un canal déterminé en fonction de sa hauteur toute impulsion électrique qu'il reçoit. Pendant le temps nécessaire à ces différentes opérations (70 μ secondes environ), aucune nouvelle impulsion ne peut être admise. C'est le "temps mort" de l'appareil dont il est tenu compte dans la durée des mesures (correction du temps mort).

T A B L E A U

Radionucléide	Date étalonnage	N° solution	Activité Solution µc/g	Composition chimique et Caractéristiques
^{137}Cs	5/ 1/61	795	15,7 ± 1 %	NO_3Cs en solution à pH : 1,3
^{65}Zn	23/11/62	485	0,207 ± 3 %	3,6 µg/g de Cl_2Zn en HCl N = 0,1
^{106}Ru - ^{106}Rh	4/ 9/62	304	17,5 ± 2,5 %	en NO_3H N = 8
^{144}Ce - ^{144}Pr	24/ 4/61	726	23 ± 2 %	2 µg/g $CeCl_3$ ds HCl N = 1
^{95}Zr - ^{95}Nb ^{95}Zr	8/12/62	556	12,77 ± 4 %	Complexe oxalate en $(COOH)^2$ à 0,5 % - pH = 1,7
^{95}Nb	8/12/62	556	22,23 ± 4 %	

2.1.2.2. Les mesures peuvent être effectuées pendant des durées de temps prédéterminées : 0,12 - 3,1 - 49,2 secondes, 13,1 et 210 minutes. Il est même possible de multiplier chacune de ces valeurs par un facteur 2, 4, 8.

2.1.2.3. Sa mémoire magnétique conserve pendant un temps indéfini les informations accumulées dans les canaux. Chacun de ceux-ci peut stocker jusqu'à 1 000 000 de coups.

2.1.2.4. L'affichage du spectre se fait sous la forme de courbe ou sous forme numérique. Dans ce dernier cas, huit chiffres apparaissent sur l'écran : les deux premiers correspondent au numéro du canal, les autres indiquent le nombre de coups accumulés dans chaque canal.

2.1.2.5. La dérive de cet appareil ne dépasse pas un canal par 24 heures.

2.1.2.6. Signalons enfin, que ce spectromètre peut enregistrer en addition ou au contraire en soustraction les informations qu'il reçoit. Nous verrons l'intérêt que présente ce dispositif dans l'étude des spectres complexes.

2.2. Sources de radioéléments

2.2.1. Les radioéléments dont nous nous sommes servis au cours de nos expériences proviennent du Laboratoire de Mesure des Radioéléments du C.E.N. de Saclay, sous forme de solutions étalons dont nous donnons les caractéristiques dans le tableau ci-contre.

Nous avons utilisé, de plus, une solution de ^{131}I et de ^{51}Cr délivrée par le Centre de Saclay à des fins médicales et dont l'activité est connue avec une précision de l'ordre de $\pm$ 5 %.

	Période	Energie des photons γ utilisés pour les étalonnages (MeV)
^{109}Cadmium	470 jours	0,087
^{133}Baryum	7,2 années	0,330
^{113}Etain	119 jours	0,393
^{137}Césium	26,6 années	0,662
^{22}Sodium	2,6 années	1,280
^{54}Manganèse	300 jours	0,840
^{65}Zinc	245 jours	1,120
^{60}Cobalt	5,27 années	1,330

2.2.2. Nous disposons, enfin, d'un jeu de huit sources de rayonnements γ d'énergie comprise entre 0,087 et 1,37 MeV (marque Tracerlab). Les éléments qui les constituent ont été choisis pour leurs propriétés : en effet leur période, leur schéma de désintégration ainsi que l'énergie des photons émis sont connus avec précision. (cf. TABLEAU ci-dessus)

Chaque source mince et ronde est préparée par dépot sur un fin support, de 2,8 cm^2 de surface, de la solution active. Après séchage, on la place entre deux disques plastiques de 23 mm de diamètre et 0,37 mm d'épaisseur : cette présentation lui assure une bonne conservation.

Son activité exprimée en nombre de photons γ émis par unité de temps est connue avec précision car déterminée à l'aide d'un spectromètre étalonné au préalable.

Nous avons pu, grâce à ce jeu de source, déterminer la résolution et l'efficacité de comptage du détecteur utilisé.

2.2.2.1. Résolution du détecteur en énergie.

Celle-ci se calcule, pour chaque rayonnement γ, selon les indications données plus haut (chapitre II - 1ère partie).

Nous avons adopté le dispositif expérimental suivant : la source de photons γ est placée dans l'axe de la sonde, à 0,5 cm du cristal INa(Tl).

TABLEAU III

Résolution du détecteur en fonction de l'énergie des photons γ.

Energie des photons (MeV)	Elément émetteur γ	Résolution (%)
0,087	^{109}Cd	23,30
0,320	^{133}Ba	13,00
0,393	^{113}Sn	11,40
0,662	^{137}Cs	9,60
0,840	^{54}Mn	8,90
1,120	^{65}Zn	8,75
1,280	^{22}Na	8,70
1,330	^{60}Co	8,60

TABLEAU IV

EFFICACITE DE DETECTION AU NIVEAU DE LA RAIE D'ABSORPTION TOTALE EN FONCTION DE L'ENERGIE DES PHOTONS γ

Radioélément	Energie du rayonnement γ étudié (MeV)	X Nombre photons γ émis par la source / minute à la date de la mesure	Y Nombre impulsions comptées dans la raie d'absorption totale / minute	Efficacité de détection au niveau de la raie d'absorption totale $\varepsilon = \frac{Y}{X}$
^{109}Cd	0,087	22 900	6 700 $\pm$ 100	0,293 $\pm$ 0,003
^{133}Ba	0,320	106 000	13 600 $\pm$ 500	0,128 $\pm$ 0,005
^{113}Sn	0,393	42 000	4 400 $\pm$ 75	0,105 $\pm$ 0,001
^{137}Cs	0,662	394 000	16 378 $\pm$ 300	0,042 $\pm$ 0,001
^{54}Mn	0,840	670 000	22 300 $\pm$ 300	0,033 $\pm$ 0,002
^{65}Zn	1,120	126 000	2 592 $\pm$ 20	0,0205 $\pm$ 0;001
^{22}Na	1,280	370 000	7 000 $\pm$ 100	0,0189 $\pm$ 0,0002
^{60}Co	1,330	1 900 000	29 300 $\pm$ 400	0,0154 $\pm$ 0,002

Les résultats consignés dans le TABLEAU III et dans la FIGURE 19 montrent que la résolution du détecteur, malgré les faibles dimensions du cristal scintillant est assez médiocre. Avec la source de ^{137}Césium sa valeur est de 9,60 % alors que l'on obtient couramment avec un cristal de cette taille une valeur inférieure à 8 %.

Cette défectuosité ne constitue pas un empêchement aux expériences que nous avons à entreprendre mais nous devrons en tenir compte lors de la mise au point de l'ensemble de comptage définitif.

2.2.2.2. Efficacité de comptage au niveau des raies d'absorption totale ε.

Nous appelons, comme on l'a vu, efficacité de comptage au niveau d'une raie d'absorption totale le rapport du nombre d'impulsions comptées dans cette raie pendant l'unité de temps au nombre de photons γ émis par la source pendant le même temps.

Le montage expérimental est le même que dans le cas précédent c'est à dire source placée dans l'axe du détecteur à 0,5 cm du cristal.

En consultant les résultats (cf. TABLEAU IV et FIGURE 20) on constate que ε diminue beaucoup au fur et à mesure qu'augmente l'énergie des photons γ étudiés. Ceci, nous l'avons vu, est normal puisque le cristal de petite taille n'arrête bien que les photons peu énergiques, se laissant traverser par les autres.

Remarquons néanmoins que pour le ^{137}Cs, avec des conditions de mesure assez bonnes, quatre photons seulement sur cent cèdent totalement leur énergie au cristal. Cette constation laisse entrevoir les difficultés que nous rencontrerons dans le comptage de très faibles activités.

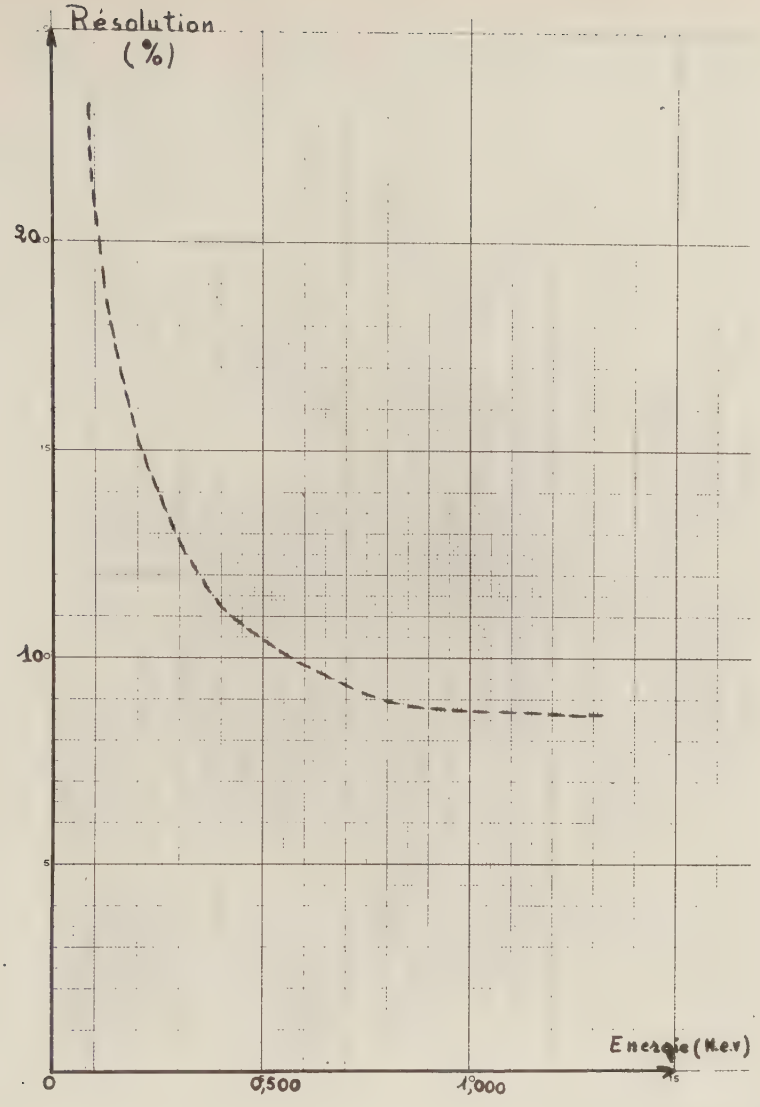


FIGURE 19

Résolution du détecteur utilisé.

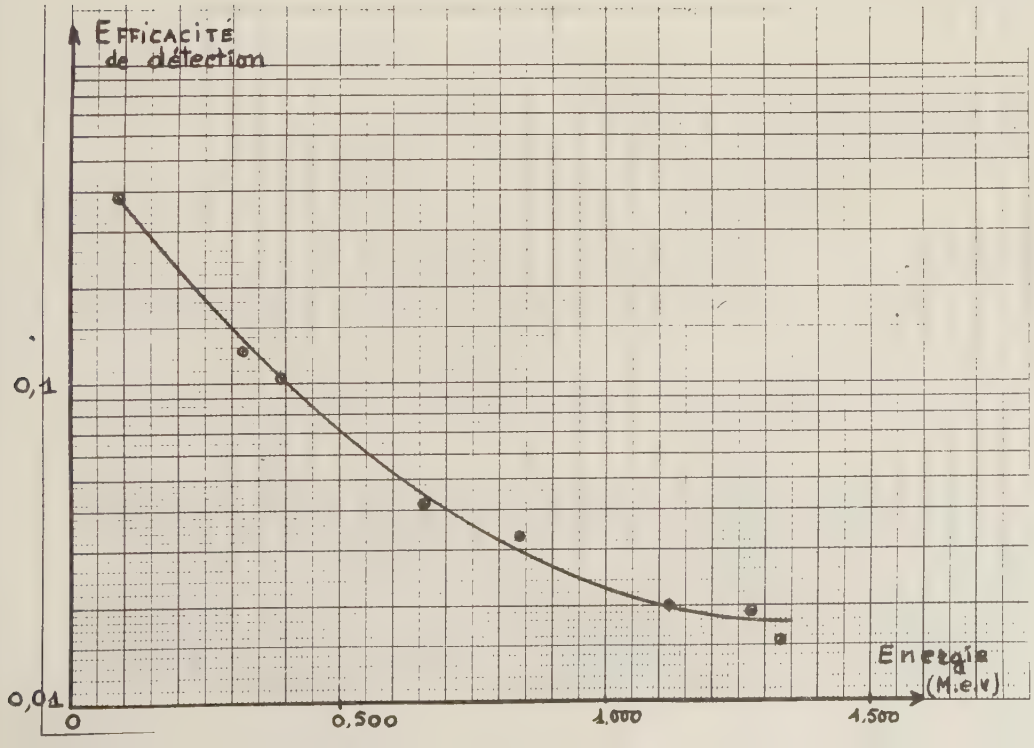


FIGURE 20

Efficacité de détection des photons γ en fonction de leur énergie

$$\varepsilon = \frac{Y}{X}$$

CHAPITRE II

Etude de la géométrie optimum de l'échantillon

L'efficacité de détection des rayons γ est, nous venons de le voir, assez faible avec la sonde dont nous disposons. C'est pourquoi la détermination de la radioactivité de l'eau, au niveau des C.M.A.P., nécéssite d'opérer sur un volume important de celle-ci.

1. Le premier problème qui se pose est la répartition de cette masse d'eau autour du détecteur pour obtenir le meilleur rendement de comptage.

Les différents auteurs qui effectuent des mesures sur des liquides utilisent un récipient cylindrique creusé d'un logement pour le détecteur, comme le montrent les FIGURES 21 et 22 empruntées à G.R. HAGEE et coll. et P. GAGLIONE et coll.

Pour le premier, la sonde à scintillation est coiffée d'un bécher d'aluminium, de dimensions variables suivant l'échantillon (la valeur de a évoluant de 1,9 à 4,6 cm) qui recouvre presque entièrement le cristal INa(Tl).

Le dispositif adopté par P. GAGLIONE ne diffère du précédent que par le fait que le scintillateur est enfoncé plus profondément dans le porte échantillon.

Ces montages conviennent parfaitement pour des sources de volume réduit et surtout d'activité assez importante.

Nous nous sommes demandé s'il ne serait pas préférable, dans le cas qui nous intéresse, d'employer un récipient sphérique dont le centre serait occupé par le cristal scintillant :

1.1.1. Pour cela, nous avons effectué des mesures de l'activité d'une source mince de ^{137}Cs lorsque celle-ci, située à une distance fixe du détecteur (4,75 puis 9,5 cm) décrit autour du cristal un cercle de rayon égal à 4,75 puis à 9,5 cm. (cf. FIGURE 23)

Les résultats obtenus sont consignés dans le TABLEAU V et sous forme d'indicatrice (cf. FIGURE 24)

- A la distance de 9,5 cm, le nombre d'impulsions enregistrées pendant le temps de mesure dans le spectre entier varie peu pour les différentes positions de la source : l'efficacité de détection reste donc constante. Il en est de même pour la surface de la raie d'absorption totale à l'exception des points extrêmes étudiés (angle 130°, 140°, 150°). Pour ceux-ci, la diminution des 2 rapports A et ε révèle une modification dans l'aspect du spectre : la distribution Comtpon prenant plus d'importance au dépens de la raie d'absorption totale. Il faut donc supposer que les photons γ émis par la source perdent une partie de leur énergie, par absorption dans les matériaux enveloppant la sonde, avant de réagir dans le cristal.

- Lorsque la distance n'est plus que de 4,75 cm l'efficacité de comptage globale augmente d'une façon importante (50 %) de l'angle 0° à l'angle 130°. Ce phénomène se retrouve au niveau de la raie d'absorption totale : il est moins important mais réel.

1.1.2. Cette expérience a été renouvellée avec des sources de ^{109}Cd (énergies des photons émis : 0,087 MeV) et de ^{60}Co (1,330 MeV). Les résultats sont comparables mais pour ^{60}Co on ne retrouve pas la dégradation du spectre observée avec ^{137}Cs.

La forme des indicatrices suggère donc d'utiliser un récipient sphérique au centre duquel serait placé le scintillateur, car c'est dans ces conditions que pour un volume donné d'eau la géométrie sera la meilleure. L'adoption d'un tel récipient présente en outre l'avantage suivant : pour un même volume d'eau, la distance moyenne entre un radioélément et le détecteur est la plus petite : ceci évite une absorption trop importante des photons γ au sein même de la source. D'autre part, le nombre de γ détectés (en négligeant l'absorption) est sensiblement proportionnel au rayon du réservoir, comme on pourrait facilement le montrer.

Si l'on compare notre dispositif à celui de G.H. HAGEE, on constate qu'un récipient sphérique de 9,5 cm de rayon constitue un volume utile[1] de 3.300 cm^3

1) le volume réel d'un récipient cylindrique de 9,5 cm de rayon est supérieur à 3 300 cm^3 . Cette valeur a été déterminée en tenant compte de la place occupée par le scintillateur au sein du récipient.

TABLEAU V - EFFICACITE DE DETECTION DES RAYONNEMENTS γ EMIS PAR ^{137}Cs
EN FONCTION DE LA POSITION DE LA SOURCE ^{137}Cs VIS A VIS DU COMPTEUR

Source plane étudiée	Distance source compteur (cm)	Angle fait par la direction du rayonnement avec l'axe du détecteur	Temps comptage (minutes)	X N. γ émis par source pendant temps comptage	Z N. impulsions obtenues dans spectre entier pendant temps comptage	Y N. impulsions obtenues dans raie d'absorption totale pendant temps comptage	$\varepsilon = \frac{Y}{X}$ $(.10^{-3})$	$A = \frac{Y}{Z}$
^{137}Cs	9,5	0° dans axe détecteur	13,1	3 212 121 x 2	30 878 $\pm$ 340	6 800 $\pm$ 50	1,32	0,220
"	"	20°	"	"	30 216 $\pm$ 335	7 241 $\pm$ 55	1,41	0,240
"	"	40°	"	"	29 440 $\pm$ 335	6 807 $\pm$ 50	1,33	0,230
"	"	60°	"	"	32 016 $\pm$ 340	7 250 $\pm$ 55	1,41	0,226
"	"	90°	"	"	34 240 $\pm$ 345	7 517 $\pm$ 60	1,47	0,220
"	"	100°	"	"	33 440 $\pm$ 340	7 527 $\pm$ 60	1,47	0,225
"	"	110°	"	"	32 400 $\pm$ 340	6 859 $\pm$ 50	1,42	0,212
"	"	130°	"	"	34 240 $\pm$ 340	6 657 $\pm$ 50	1,30	0,194
"	"	140°	"	"	33 400 $\pm$ 340	6 425 $\pm$ 45	1,25	0,190
"	"	150°	"	"	33 440 $\pm$ 340	5 515 $\pm$ 40	1,10	0,165
"	4,75	0° dans axe scintillateur	6,30	x1	43 600 $\pm$ 600	10 573 $\pm$ 85	3,30	0,242
"	"	40°	"	"	44 400 $\pm$ 600	10 877 $\pm$ 85	4,20	0,245
"	"	60°	"	"	47 200 $\pm$ 620	11 403 $\pm$ 87	4,40	0,241
"	"	90°	"	"	57 400 $\pm$ 700	13 808 $\pm$ 100	5,30	0,240
"	"	110°	"	"	69 240 $\pm$ 750	15 520 $\pm$ 120	5,90	0,220
"	"	130°	"	"	57 600 $\pm$ 700	12 023 $\pm$ 100	4,60	0,208

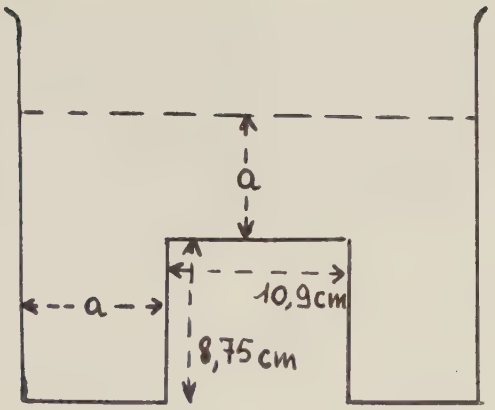


FIGURE 21

Dispositif de mesure
utilisé par G.R. HAGEE et coll.

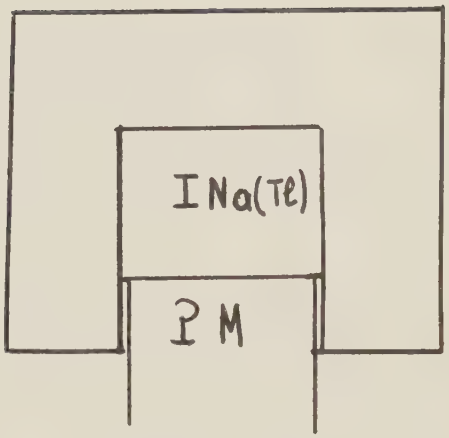


FIGURE 22

Dispositif de mesure
utilisé par P.GAGLIONE et coll.

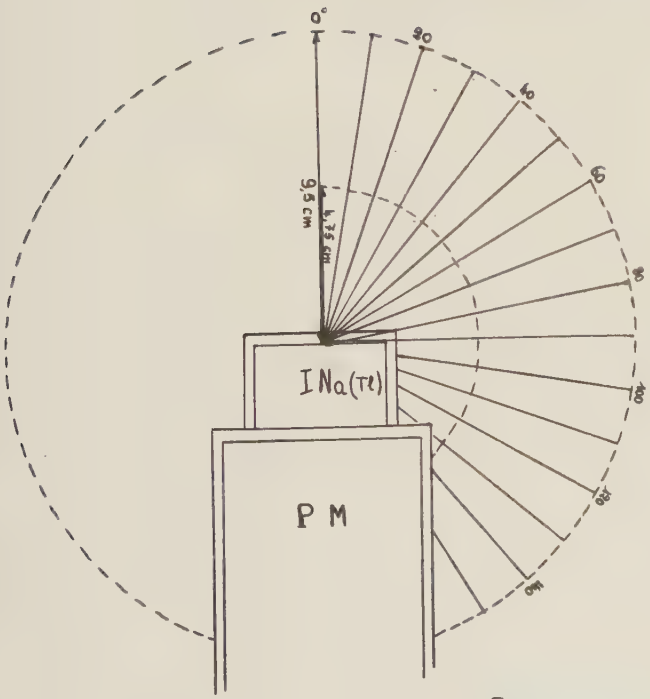


Figure 23

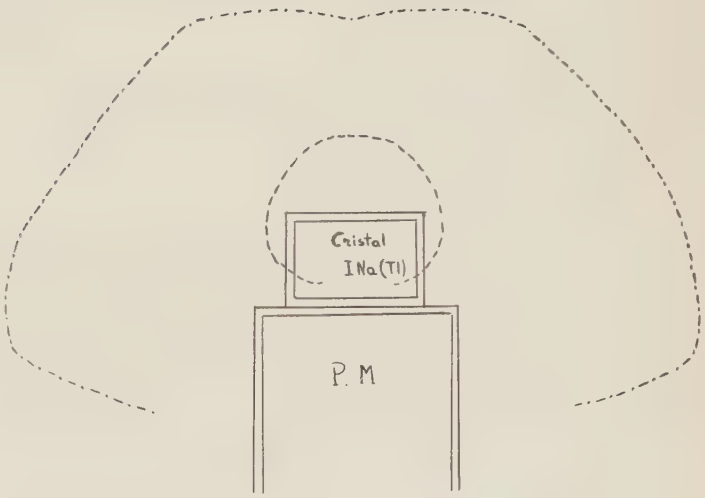


FIGURE 24

Indicatrices de l'efficacité de comptage au niveau de la raie d'absorption totale pour ^{137}Cs

Source située à 4,75 cm du détecteur
Source située à 9,50 cm du détecteur

Les mêmes conditions sont obtenues pour G.H. HAGEE en utilisant un bécher dont la valeur de a est de 9 cm. La mesure du radioélément situé à cette distance dans l'axe du scintillateur, est meilleure que dans le cas précédent. Par contre, les positions B', C', D' sont nettement défavorisées puisqu'elles sont situées respectivement à 10,5, 13, 9,5 cm du compteur.

1.1.3. Nous l'avons confirmé en effectuant des comptages de la source de ^{137}Cs placée aux différents points indiqués sur la FIGURE 25, a étant choisi égal à 4,75 cm et le faisceau du rayonnement γ émis en direction du point milieu du cristal : comme le montrent les résultats (cf. TABLEAU VI), l'activité mesurée au niveau de la raie d'absorption totale varie beaucoup d'une position à l'autre, la valeur la plus élevée étant obtenue lorsque la source est dans l'axe du scintillateur. L'efficacité de comptage n'est pas uniforme ; elle diminue de plus par rapport au cas précédent.

En conclusion de cette expérience, nous adoptons la forme sphérique pour la confection des récipients.

2. Ce choix fait, il convient de déterminer le volume d'eau et par suite les dimensions du récipient qui permettent les meilleures mesures.

Opérant sur des prélèvements peu actifs, nous avons intérêt à augmenter le plus possible leur masse et par là même, le nombre de photons qui, émis par la source ainsi constituée, sont détectés par le scintillateur.

Cependant, on ne peut accroître indéfiniment le volume d'eau sans créer une auto-absorption : certains photons γ perdant, au profit des molécules d'eau qu'ils rencontrent sur leur parcours, une partie plus ou moins importante de leur énergie, avant de parvenir au détecteur. Ce phénomène est d'autant plus marqué que l'épaisseur traversée devient plus grande : il s'en suit des modifications dans les spectres γ : les distributions Compton prennent plus d'importance au dépens des raies d'absorption totale. Celles-ci ont des limites moins précises, et s'élargissent : la résolution de l'ensemble de comptage diminue. Tout ceci contribue à rendre difficile et délicate l'étude des spectres complexes obtenus sur un mélange de radioéléments.

Il est donc nécessaire de trouver un compromis qui permette la mesure de faibles activités tout en n'altérant pas la forme des spectres.

Dans ce but, nous avons fait construire en chlorure de polyvinyle deux lots de bonbonnes sphériques : les unes ont une capacité de 4 litres, les autres de 12,775 litres, en tenant compte naturellement du volume occupé par le logement de la sonde à scintillation.

Le choix de ces dimensions n'est pas le fait du hasard : nous pensons que si nous voulons essayer, avec quelques chances de succès, de mettre au point une méthode de dosage de la radioactivité de l'eau, sans la concentrer, il nous est indispensable d'opérer, avec la sonde dont nous disposons, sur au moins 4 litres.

Avec 12,775 litres, on peut prévoir la détection d'un nombre plus important de rayons γ émis par la source : il reste à savoir si les phénomènes d'auto-absorption ne sont pas trop importants dans ce cas et ne gènent pas l'interprétation des résultats obtenus.

2.1. Pour nous rendre compte de ceci, nous avons réalisé l'expérience suivante sur ^{40}K contenu dans une solution de ClK (196,25 g par litre). Nous avons rempli les deux bonbonnes avec cette solution et avons effectué un comptage sur chacune.

Les résultats obtenus permettent certains commentaires et conclusions.

2.1.1. Lorsqu'on opère avec le récipient de quatre litres, l'efficacité de détection à la raie d'absorption totale est de $5,9.10^{-4}$. Cette valeur correspond à celle que nous avons obtenue pour la source de ^{60}Co placée à 9,5 cm du détecteur. Les énergies des photons γ émis par ces deux éléments sont assez voisines : on peut déjà affirmer :

1 - que dans ce cas il ne semble pas y avoir de différence de détection, que la source soit répartie en couche mince sur quelques cm^2 et située à 9,5 cm du détecteur ou bien dispersée dans un volume important de solution entourant le compteur en une sphère de rayon égal à 10 cm.

2 - que l'absorption des rayons γ par les molécules d'eau est négligeable sinon nulle puisque la surface n'est pas altérée au profit de la distribution Compton.

Ceci est d'ailleurs confirmé par la résolution normale obtenue au niveau de la raie d'absorption totale. On ne peut néanmoins généraliser et étendre cette conclusion aux photons γ d'énergie inférieure avant de l'avoir vérifiée.

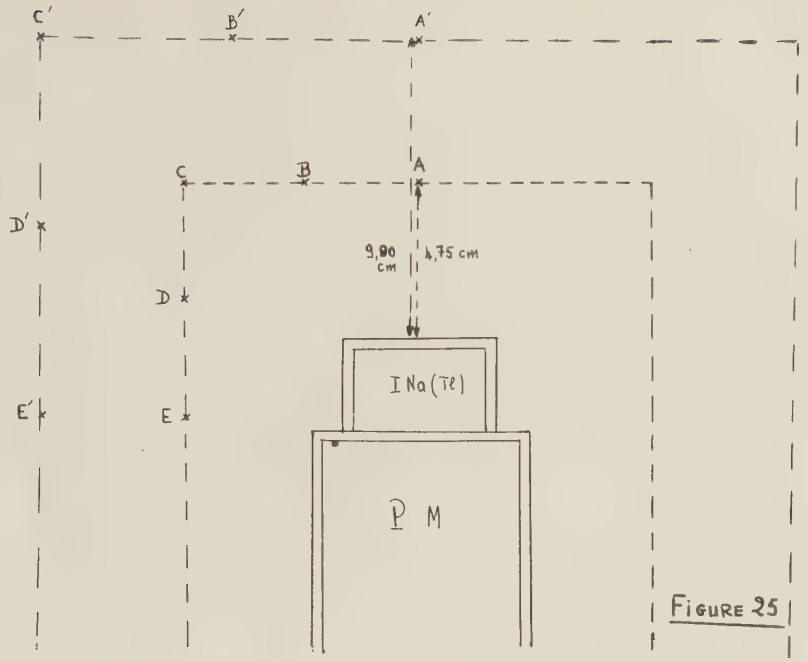


FIGURE 25

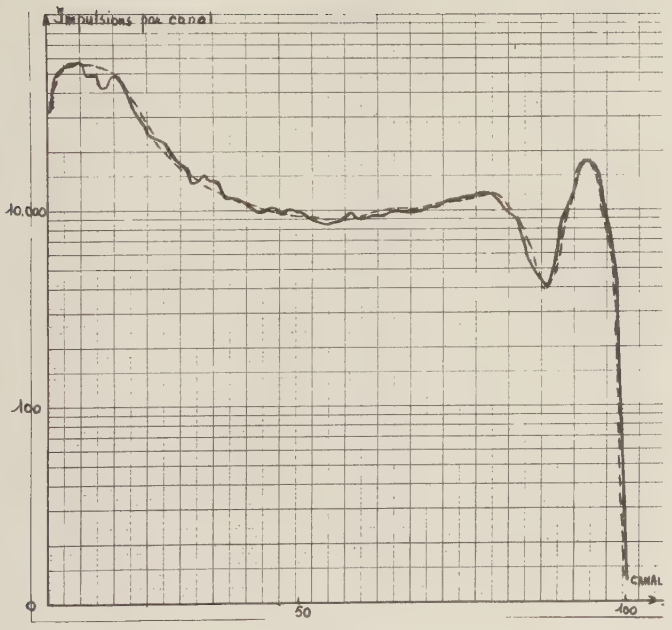


FIGURE 26

Spectres de ^{40}K

——— Spectre obtenu sur 4 litres de solution

– – – – Spectre obtenu sur 12,775 litres de solution

Raies d'absorption totale normalisée à la même hauteur.

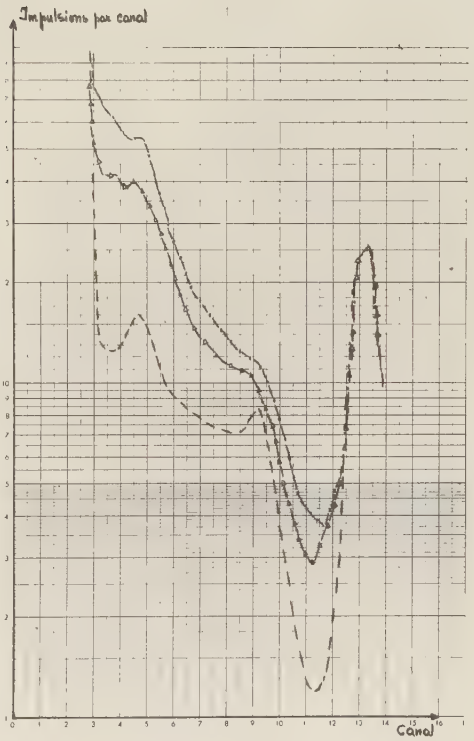


FIGURE 27

Etude de la forme du spectre de ^{137}Cs

— — — Spectre réalisé avec source mince placée devant le détecteur à cristal INa(Tl)

—▲—▲— Spectre réalisé sur 4 litres de solution

—·—·— Spectre réalisé sur 12,775 litres de solution

Raies d'absorption totale normalisées à la même hauteur.

T A B L E A U VI

Efficacité de détection des rayonnements γ émis par ^{137}Cs en fonction de la position de la source de ^{137}Cs vis à vis du compteur.

Source étudiée	Position de la source	Distance source compteur (cm)	Temps comptage (minutes)	X N γ émis par source pendant le temps comptage	Y N impulsions obtenues dans raie d'absorption totale pendant temps comptage	$\varepsilon = \frac{Y}{X}$
^{137}Cs	A	4,75	6'30	3 212 121	9 734 ± 85	$3,03.10^{-3}$
	B	5	"	"	7 626 ± 60	2,39
	C	7,70	"	"	5 028 ± 40	1,59
	D	5	"	"	8 372 ± 72	2,60
	E	4,75	"	"	8 250 ± 72	2,59

2.1.2. La mesure effectuée sur un volume plus important de solution (12,775 l au lieu de 4 l) conduit à une efficacité de détection au niveau de la raie d'absorption totale inférieure à celle que nous avions obtenue dans le cas précédent. ($2,9.10^{-4}$ au lieu de $5,9.10^{-4}$)

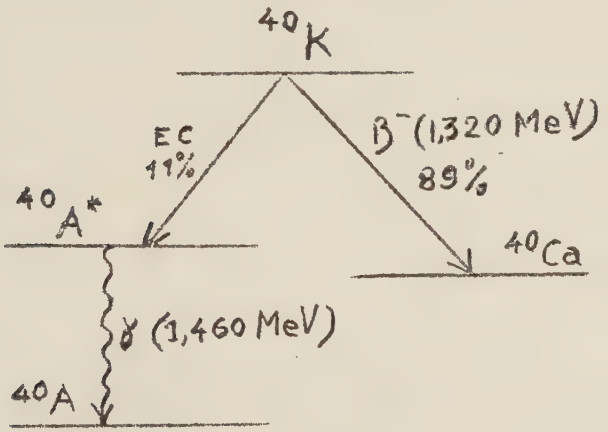
Si l'on compte maintenant le nombre d'impulsions accumulées dans la raie d'absorption totale pour chacune des expériences réalisées dans la même durée de temps, on constate, au contraire, une augmentation sensible de celui-ci dans la deuxième expérience (84 par minute au lieu de 53). Ceci est important à considérer car, nous le savons, l'exactitude des mesures dépend du taux de comptage.

L'opération est d'autant plus bénéficiaire qu'aucune modification n'apparait dans la forme des spectres (la distribution Compton reste la même : donc pas d'auto-absorption) et dans le pouvoir de résolution (7,43 au lieu de 7,22 %) (cf. FIGURE 26)

L'adoption d'un récipient de grande capacité semble donc indiqué dans ce cas, mais ces résultats sont obtenus avec un rayonnement assez énergique, et doivent être vérifiés pour les autres.

Expériences réalisées avec ^{40}K

Schéma de désintégration du ^{40}K



11 γ pour 89 β c'est à dire 12,7 γ % β

1 g K naturel = $\frac{12,7 \times 1730}{100}$

= 219 γ/minute

Expérience n°1

Volume : 4 litres
La solution renferme 785 g de ClK, c'est à dire 410,66 g de Potassium naturel.
Un gramme de Potassium naturel est le siège de l'émission de 3,65 γ/seconde, c'est à dire 219 γ/minute.
L'activité γ de la solution est donc de 219 × 410,66 = 89 935 /minute.

L'activité γ spécifique par litre d'eau = 22 967,5
Temps de mesure = 210 minutes

1) Nombre d'impulsions comptées dans la raie d'absorption totale (1,46 MeV) du spectre γ de ^{40}K après déduction du mouvement propre

= 11 164 / 210 minutes = 53 $\pm$ 0,1 par minute

2) Efficacité de détection à la raie d'absorption totale

$$\frac{53}{89\ 935} = 5{,}9.10^{-4}$$

3) Résolution de l'ensemble de comptage = 7,22 %

Expérience n°2

Volume : 12,775 litres
La solution renferme 2 507,10 g de ClK, c'est à dire 1 315,45 g de Potassium naturel.
L'activité γ de la solution est de 219 × 410,66 = 288 084 γ/minute.
L'activité γ spécifique par litre d'eau = 288 084/12,775 = 22 550
Temps de mesure : 210 minutes

1) Nombre d'impulsions comptées dans la raie d'absorption totale (1,46 MeV) du spectre γ de ^{40}K après déduction du mouvement propre

= 17 600 / 210 minutes = 84 $\pm$ 0,05 par minute

2) Efficacité de détection à la raie d'absorption totale

$$\frac{84}{288\ 084} = 2{,}90.10^{-4}$$

3) Résolution de l'ensemble de comptage = 7,43 %

2.2. Nous l'avons fait en étudiant les spectres γ que donne une source de ^{137}Cs lorsque celle-ci est répartie successivement en une couche mince de quelques cm^2 puis en un volume de 4 litres et enfin de 12,775 litres.

La FIGURE 27 met en évidence certains faits importants :

2.2.1. Les distributions Compton observées lorsque la source est constituée par 4 ou 12,775 litres de solution sont beaucoup plus importantes que dans le cas précédent masquant le pic de rétrodiffusion.

Il faut donc admettre que certains rayons γ émis par le ^{137}Cs perdent avant de réagir avec le cristal une partie de leur énergie par choc avec les molécules d'eau de la solution.

2.2.2. Contrairement à ce qui se passait pour le ^{60}Co, il y a donc auto-absorption mais si ce phénomène prend plus d'importance lorsque l'on passe de 4 à 12,775 litres, l'augmentation de l'absorption est relativement faible.

Ceci est d'ailleurs confirmé par la détermination de la résolution du détecteur : la valeur initiale de 9,3 % passe à 10,3 % pour les 2 expériences.

En conclusion, nous pensons :

- que l'utilisation d'un récipient sphérique pour la mesure de la radioactivité des échantillons est à retenir. Elle permet une bonne détection des rayons γ.

- qu'il est nécessaire d'opérer sur un grand volume d'eau si l'on veut effectuer des comptages précis en des temps relativement courts. Il faut néanmoins tenir compte de l'autoabsorption au sein de l'échantillon. Ce phénomène inexistant pour les photons γ d'énergie assez élevée, se révèle important pour des énergies plus faibles.

Cependant, comme il n'est pas plus marqué pour les deux récipients utilisés, comme le comptage est meilleur avec le récipient de grande capacité, nous adopterons celui-ci.

CHAPITRE III

Détermination du mouvement propre de l'ensemble de comptage. Sa valeur minimum. Son influence sur la précision de l'analyse radiochimique.

Le mouvement propre d'un ensemble de comptage conditionne, nous l'avons vu, l'exactitude des mesures et l'activité limite détectable avec précision.

Dans le but que nous poursuivons, il est interessant de le connaitre et d'essayer de le réduire au minimum.

Les impulsions électriques dûes au photomultiplicateur (courant résiduel) et au cristal INa(Tl) (présence de ^{40}K) ne peuvent être évitées ni même diminuées. On peut, par contre, protéger le détecteur contre les différents rayonnements parasites, qu'ils soient d'origine cosmique ou qu'ils proviennent de sources diverses : matériaux entourant la sonde et renfermant des isotopes naturels radioactifs, radioéléments manipulés au voisinage de la sonde.

Ceci se fait par l'utilisation d'un blindage dont la nature, l'épaisseur, la disposition vis à vis de l'ensemble source-détecteur doivent être définis avec soin pour chaque dispositif.

1. Pour cela, nous avons réalisé deux séries d'expériences :

1.1.1. Le mouvement propre du détecteur est enregistré pendant un temps assez long (20 heures) pour une zone d'énergie de rayonnement γ comprise entre 0 et 2,200 MeV, lorsque celui-ci est :

- sans protection

- entouré de tous côtés d'un blindage de plomb, de 5 cm d'épaisseur, situé à 2 cm de ses parois.

- entouré dans les mêmes conditions d'un blindage de 10 cm d'épaisseur.

- placé dans le logement d'une bonbonne sphérique de 4 litres remplie d'eau distillée.

1.1.2. Les spectres γ obtenus sont consignés dans la FIGURE 28. On note :

- que tous présentent une seule raie bien individualisée d'énergie voisine de 1,440 MeV : celle-ci correspond, nous semble-t-il, à ^{40}K renfermé dans le cristal d'INa(Tl).

- qu'il n'y a à peu près plus de bruit de fond pour une énergie supérieure ou égale à 1,750 MeV.

De plus, la distribution énergétique observée lorsque aucune protection n'entoure le détecteur révèle un certain nombre de "bosses" qui correspondent sensiblement aux énergies des principaux photons γ émis par $^{226}_{88}Ra$ et ses descendants.

Spectre du bruit de fond	Spectre $^{226}_{88}Ra$
Energie (MeV) correspondant aux accidents observés dans le spectre.	Energie (MeV) des rayonnements γ émis par cet élément et ses descendants.
2,140	2,190
1,780	1,760
1,440	1,390
1,120	1,130
0,910	0,920
0,730	0,790
0,600	0,610

Ceci, déjà décrit par D.A. ROSS, laisse supposer que les matériaux de construction des pièces dans lesquelles nous travaillons renferment des isotopes naturels de la famille du Radium. Ces accidents sont moins manifestes lorsque la sonde est immergée dans l'eau qui joue le rôle d'absorbant. Ils disparaissent complètement pour une protection de 5 cm de plomb. Dans ce cas, le

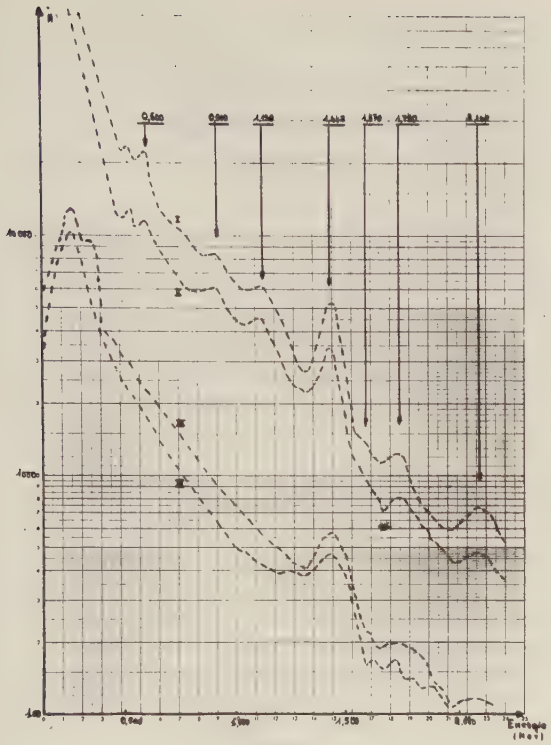


FIGURE 28

ETUDE DU MOUVEMENT PROPRE DU DETECTEUR

SPECTRE I OBTENU AVEC LE DETECTEUR NON PROTEGE

SPECTRE II OBTENU AVEC LE DETECTEUR PLACE DANS LE RECIPIENT SPHERIQUE RENFERMANT DE L'EAU DISTILLEE

SPECTRE III OBTENU AVEC LE DETECTEUR PROTEGE PAR 5 CM DE PLOMB

SPECTRE IV OBTENU AVEC LE DETECTEUR PROTEGE PAR 10 CM DE PLOMB

(N = NOMBRE D'IMPULSIONS COMPTEES PENDANT 1 200 MINUTES DANS CHAQUE CANAL ; LARGEUR D'UN CANAL = 17 K.e.v.)

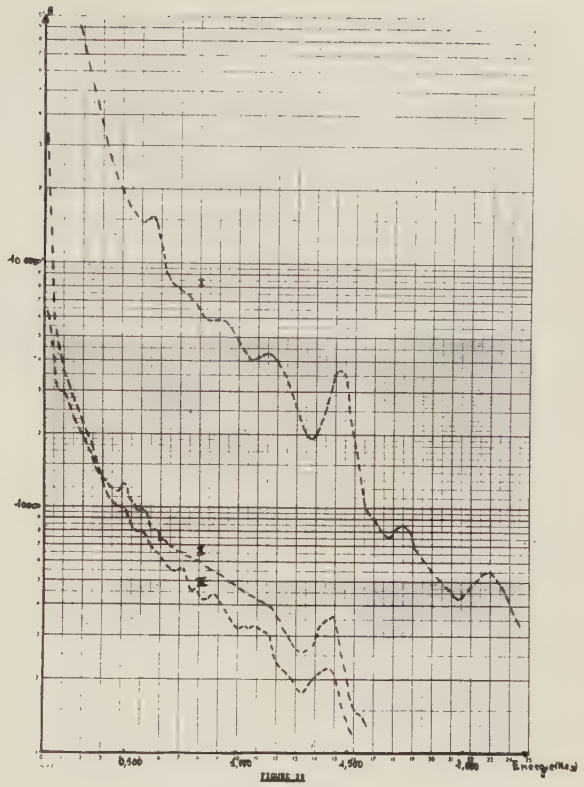


FIGURE 29

ETUDE DU MOUVEMENT PROPRE DU DETECTEUR

SPECTRE I OBTENU AVEC LE DETECTEUR NON PROTEGE

SPECTRE II OBTENU AVEC LE DETECTEUR PLACE DANS LA CHAMBRE DE PLOMB.

SPECTRE III OBTENU AVEC LE DETECTEUR PLACE DANS LE LOGEMENT DU RECIPIENT SPHERIQUE REMPLI D'EAU. CE RECIPIENT EST SITUE DANS LA CHAMBRE BLINDEE.

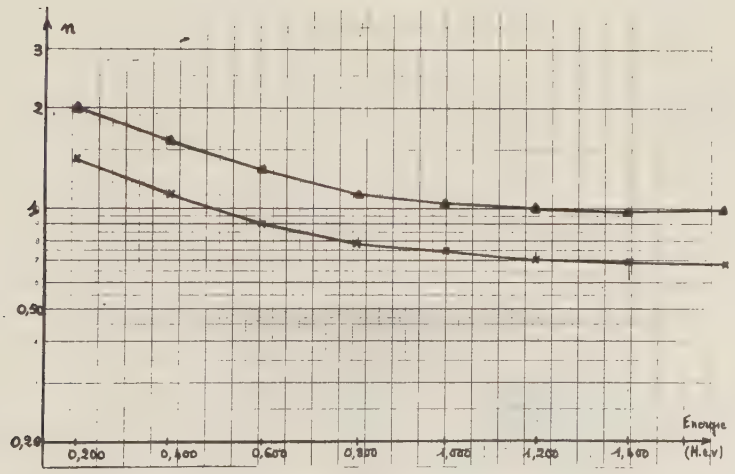


FIGURE 30

Etude du nombre d'impulsions n à compter par minute dans une raie d'absorption totale d'énergie déterminée pour que l'erreur effectuée dans la mesure soit $\leq 20\ \%$

$$n = 5 \times 2\sqrt{\frac{2}{t}}$$

t = durée de la mesure $\begin{cases} \geq 840 \text{ minutes} \\ \leq 1\,680 \text{ minutes} \end{cases}$

nombre d'impulsions est bien inférieur à ce qu'il était auparavant puisqu'il diminue d'un

facteur 25 pour une énergie peu différente de 0,120 MeV
" 10 " " " 0,600 MeV
" 10 " " " 1,400 MeV

La protection par 10 cm de plomb est un peu plus efficace : mais elle nécessite l'utilisation de masse importante de blindage. Nous verrons si son utilisation est indispensable pour des mesures de faibles activités.

1.2.1. C'est pourquoi dans une deuxième série d'expériences nous comparons le bruit de fond de la sonde :

- sans protection

- placée dans une chambre de plomb dont les parois ont une épaisseur de 5 cm.

- entourée de 12,775 litres d'eau contenue dans un des récipients sphériques décrits plus haut. Ce récipient est lui-même placé dans une chambre de plomb construite au Laboratoire aux caractéristiques définies.

Nous avons vu qu'une des principales causes de l'apparition dans les spectres de distributions Compton et de pics de rétrodiffusion importants est l'interaction avec les matériaux entourant la source de certains photons qui leur cèdent une partie de leur énergie, les rayons γ diffusés produits pouvant parvenir alors au détecteur pour y être absorbés.

C'est pourquoi on essaie de réduire au minimum ces effets en adoptant des blindages assez éloignés de la source et du compteur.

Le choix des dimensions de la chambre que nous utilisons a été fait dans ce sens. (50 cm de hauteur × 50 cm de largeur × 60 cm de longueur). Dans ces conditions la source de rayonnements γ, même contenue dans le récipient sphérique de 12,775 litres, se trouve située à une distance supérieure ou égale à 10 cm de chacune des parois construites à partir de briques de plomb, de 5 cm d'épaisseur, carrées et à chevrons (10 × 10 cm), ce qui assure un blindage homogène.

Le plancher de la chambre repose sur le sol tandis que deux plaques d'acier soutiennent le toit. Celui-ci, constitué également de briques,doit être démonté chaque fois que l'on change l'eau contenue dans la bonbonne. Ceci constitue un inconvénient important mais l'on n'a affaire qu'à un montage expérimental et provisoire.

1.2.2. Ces expériences ont donné les résultats suivants (cf. FIGURE 29)

1.2.2.1. En plaçant la sonde au centre de la chambre blindée, on compte un nombre d'impulsions inférieur à celui obtenu avec l'enveloppement du détecteur par un blindage de 5 cm de plomb. Comparé à celui du détecteur non protégé, le bruit de fond diminue d'un facteur 35 (au lieu de 26) pour l'énergie de 0,300 MeV, 15 et 11 (au lieu de 10) pour des énergies de 0,600 et 1,400 MeV.

1.2.2.2. D'autre part, la masse des 12,775 litres d'eau contenue dans le récipient joue un rôle non négligeable d'écran protecteur vis à vis des rayonnements parasites puisque le spectre obtenu avec la sonde immergée dans l'eau est encore inférieur au précédent. La différence enregistrée entre les deux distributions semble comparable à celle que l'on obtenait lorsque dans l'expérience précédente, l'épaisseur du blindage passait de 5 à 10 cm.

En conclusion, nous pensons que la chambre utilisée répond au but que nous nous étions fixé.

- ses dimensions permettent de loger un récipient de grande capacité (12,775 litres) situé loin des parois, ce qui évite les phénomènes de diffusion des photons γ par celles-ci.

- avec un blindage de 5 cm de plomb on réduit considérablement le bruit de fond puisque la valeur de celui-ci exprimée en impulsions par minute, est ramenée à 143 dans un intervalle d'énergie comprise entre 0,100 et 2,225 MeV.

En choisissant une épaisseur double nous aurions pu encore le diminuer mais cela nécessite des masses importantes de plomb.

- enfin, nous n'avons pas cru nécessaire de recouvrir les faces internes de la chambre par des feuilles de Cadmium et de Cuivre (absorbant les photons X émis par le plomb) puisque le détecteur est situé à une distance relativement grande du blindage.

2. Ces résultats conduisent à la détermination de l'activité minimum que l'on peut apprécier en un temps donné sur chaque source (erreur inférieure ou égale à 20 %)

Une règle, que chacun admet, veut que dans toute mesure de radioactivité, le rapport du nombre d'impulsions comptées sur l'échantillon à celui dû au bruit

de fond doit être le plus grand possible. Cette règle repose sur un certain nombre d'hypothèses dont la principale se résume ainsi : les erreurs effectuées sur le comptage de l'échantillon et du bruit de fond proviennent uniquement des fluctuations statistiques des mesures, toutes les autres causes d'erreurs étant exclues, qu'elles soient dûes à l'appareillage ou à l'expérimentateur.

Dans ces conditions, on est en droit d'estimer la déviation standard par la racine carré du nombre de coups comptés dans la mesure.

2.1. Si dans une raie d'absorption totale d'énergie définie, on compte au cours d'une mesure, S impulsions pendant le temps t (minutes) le nombre d'impulsions dûes au bruit de fond est B pendant le même temps.
Le nombre d'impulsions nettes est

$$N = S - B$$

L'erreur faite sur la mesure de S est $\sigma_S = \sqrt{S}$
" " " " B " $\sigma_B = \sqrt{B}$
" " " " N " $\sigma_N = \sqrt{S + B}$
$= \sqrt{N + B + B}$

et exprimée en pourcentage

$$\sigma_N \% = \frac{100\sqrt{N + 2B}}{N}$$

Si N est bien inférieure à 2B, ce qui est le cas dans les mesures de faibles activités, il peut être négligé et

$$\sigma_N = \sqrt{2B}$$

$$\sigma_N \% = 100\sqrt{2B/N}$$

L'exactitude de la mesure de N est $N/\sqrt{2B}$, cette formule explique la règle énoncée plus haut.

2.2. Dans la même raie, le nombre d'impulsions comptées par minute est

$$s = S/t$$

le nombre d'impulsions dûes au bruit de fond

$$b = B/t$$

et le nombre d'impulsions nettes par minute

$$n = s - b = S/t - B/t$$

L'erreur faite sur la mesure de s $\sigma_s = \sigma\frac{S}{t} = \frac{\sqrt{S}}{t}$

b $\sigma_b = \sigma\frac{B}{t} = \frac{\sqrt{B}}{t}$

n $\sigma_n = \sqrt{\sigma_S^2 + \sigma_B^2}$

$= \sqrt{S/t^2 + B/t^2}$

Or S = st
B = bt

$$\sigma_n = \sqrt{st/t^2 + bt/t^2}$$
$$= \sqrt{s/t + b/t}$$

$$= \sqrt{n/t + b/t + b/t}$$

On peut considérer que n est négligeable devant 2 b et par suite :

$$\sigma_n = \sqrt{\frac{2b}{t}}$$

Si on veut connaitre n à ± 20 %, σ_n doit être $\leqslant$ 1/5 n et $n = 5\sigma_n$ pour un intervalle de sécurité de 1 σ = 68 % des cas.

$n = 5 \times 2\sigma_n$ pour un intervalle de sécurité de 2 σ = 95 % des cas.

Dans ce dernier cas, le nombre d'impulsions nettes à compter par minute dans la raie considérée est donc égal à :

$$n = 5 \times 2\sqrt{\frac{2b}{t}}$$

n sera d'autant plus petit - que b sera plus faible
- que t sera plus grand

Pour une valeur donnée du bruit de fond de l'ensemble de comptage, on ne pourra jouer que sur la durée de la mesure pour augmenter sa sensibilité.

Voici à titre d'exemple, le calcul permettant de déterminer le nombre d'impulsions minimum qu'il est nécessaire de compter au niveau de la raie d'absorption totale de ^{137}Cs pour que l'erreur faite sur la mesure ne dépasse pas 20 %.

L'énergie des rayonnements γ émis par le ^{137}Cs est de 0,662 MeV.

La portion du spectre γ à explorer ΔE, pour étudier entièrement la raie est donnée en MeV par la formule

$$\Delta E = 1,7.\eta .E$$

dans laquelle E = énergie en MeV
η = résolution de l'ensemble de comptage
= 0,11

$$\text{donc } \Delta E = 0,11 \times 1,7 \times 0,662 = 0,123 \text{ MeV}$$

La valeur du bruit de fond (impulsions/minute) dans ΔE est, pour nos conditions expérimentales, de 4,1.

Pour un temps de comptage de 10 minutes, n est égal à 9 impulsions par minute tandis que pour des temps de 100 et 1 000 minutes il n'est que de 2,8 et de 0,9.

De la même façon, nous avons construit la courbe permettant de connaitre les valeurs de n pour des raies d'énergie comprise entre 0 et 1,600 MeV, ceci avec des temps de comptage de 840 et 1 680 minutes. (cf. FIGURE 30). Ces valeurs assez faibles correspondent à la mesure de sources très peu actives.

En conclusion, bruit de fond de l'ensemble de comptage et temps de mesure constituent donc les deux seuls facteurs qui conditionnent la plus faible activité que l'on puisse détecter avec précision sur n'importe quelle source.

En choisissant les dimensions et l'épaisseur de la chambre blindée nous avons fixé une fois pour toutes la valeur du premier de ceux-ci ; c'est sur le second en fin de compte que nous devons jouer chaque fois que nous voudrons effectuer des mesures de très faibles activités.

CHAPITRE IV

Détermination de l'efficacité de détection de l'ensemble de comptage en fonction de l'énergie des photons γ. Activité minimum mesurable avec précision

---

Après avoir défini les caractéristiques de l'ensemble de comptage nous devons étudier maintenant son efficacité de détection vis à vis des photons γ et établir les activités limites que l'on peut mesurer sur les échantillons d'eau.

1. Efficacité de détection de l'ensemble de comptage en fonction de l'énergie des rayonnements γ émis par une source.

Celle-ci est déterminée pour un certain nombre de radioéléments dont l'énergie des photons γ varie de 0,134 à 1,440 MeV. Les résultats obtenus permettront de construire la courbe de l'efficacité en fonction de l'énergie.

Pour réaliser cette expérience, nous nous servons des solutions étalons mentionnées plus haut, d'activité connue avec précision et dont l'intensité du rayonnement γ se déduit du schéma de désintégration du nucléide considéré.

A l'exception du ^{40}K dont nous effectuons l'étude sur une solution de Chlorure de Potassium, nous adoptons le mode opératoire suivant :

Par dilution d'une partie aliquote de la solution étalon dans un solvant approprié (eau distillée ajustée à pH convenable et renfermant un entraineur) on prépare une solution fille A dont le nombre de désintégrations se situe entre 5 000 et 10 000 par minute et par ml. Après avoir versé dans la bonbonne un volume V de A et complété

à 12,775 litres avec le solvant, on ferme le récipient que l'on agite ensuite vigoureusement.

On place alors la source ainsi constituée dans la chambre blindée décrite dans l'expérience précédente, on adapte le détecteur à cristal INa(Tl) et l'on procède à la mesure pendant une durée T (minutes).

1.1. Détermination de l'efficacité de détection au niveau de la raie d'absorption totale.

Seuls les radioéléments qui n'émettent qu'un seul groupe de photons γ monoénergétiques se prêtent à cette détermination puisque dans les autres cas (source polyénergétique) les raies d'absorption totale (à l'exception de celle qui correspond aux photons γ les plus énergiques) risquent d'être perturbées par une ou plusieurs distributions Compton.

1.1.1. Le nombre de photons γ émis pendant T est :

$$X = V \times KQ \times T$$

expression dans laquelle :

Q correspond au nombre de désintégrations dont la solution A est le siège par minute et par ml.

K représente le nombre de γ émis par désintégration

En faisant la somme Y des impulsions accumulées dans la raie d'absorption totale pendant T on calcule l'efficacité de détection ε au niveau de cette raie

$$\varepsilon = Y/X$$

1.1.2. Nous avons effectué cette expérience sur quatre sources (^{40}K, ^{65}Zn, ^{137}Cs, ^{51}Cr) et les résultats mentionnés dans les TABLEAUX VII, VIII, IX, X conduisent à deux constations.

Si on les compare à ceux que nous avions obtenus précédemment lors de l'étude du détecteur (cf.2ème Partie - Généralités) on note :

- une diminution importante de l'efficacité qui n'est plus environ que le cinquantième de ce qui avait été trouvé. Ceci n'a rien de surprenant puisque les conditions de géomètrie sont beaucoup moins favorables.

- que cette diminution est à peu près constante pour les quatre rayonnements étudiés, quelque soit leur énergie (de 0,320 à 1,440 MeV).

Nous pensons donc qu'il est possible, sans grossières erreurs d'intrapoler et de tracer à partir des

TABLEAU VII

EXPERIENCES REALISEES AVEC DES SOLUTIONS RENFERMANT ^{40}K

- 3 solutions ont été étudiées : A. B. C.
- Le schéma de désintégration de ^{40}K a déjà été donné. Rappellons qu'un gr. de K naturel émet 219 γ par minute.
- L'énergie du rayonnement γ est de 1,460 MeV

	Teneur en K naturel (sous forme ClK) dans 12,775 litres de solution (gramme)	T (minutes) Durée de la mesure	X Nombre de photons γ émis par la source pendant T	Y Nombre d'impulsions détectées dans la raie d'absorption totale	$\varepsilon = Y/X$ Efficacité de détection au niveau de la raie d'absorption totale
Solution A	102, 7	1 680	37 772 490	11 716	$3.10.10^{-4}$
Solution B	205, 4	1 680	75 544 980	19 940	$2,64.10^{-4}$
Solution C	410, 8	1 680	151 089 960	43 956	$2,91.10^{-4}$

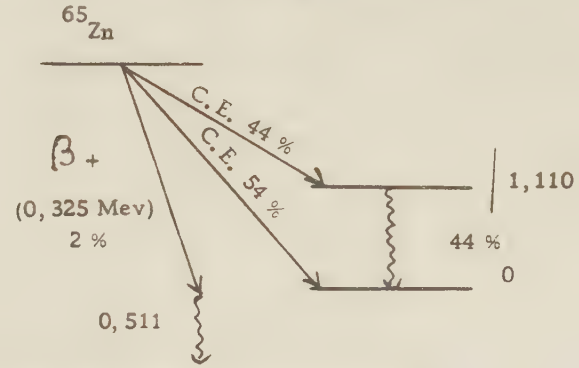
TABLEAU VIII

EXPERIENCES REALISEES AVEC DES SOLUTIONS RENFERMANT DU ^{65}Zn

- Activité de la solution étalon utilisée S = 0, 207 μ C/g $\pm$ 3 % le 23/11/1962

- Préparation des solutions : 4, 820 g de S sont ajoutés à Q. S. p. 1 000 ml HCl N/10 contenant 3, 6 μ/g de Cl_2Zn. A partir de cette solution, nous réalisons deux solutions B et C de concentration différente en radioélément : un poids donné de B est versé dans 12, 775 litres de solution HCl N/10 renfermant l'entraineur.

- Schéma de désintégration du ^{65}Zn



. L'énergie du rayonnement γ est de 1, 110 MeV
. 44 photons γ sont émis pour 100 désintégrations
. La période du ^{65}Zn est de 245 jours

	Poids de solution A mis dans 12, 775 litres de solution (g)	Date de la mesure	T (minutes) Durée de la mesure	X Nombre de photons γ émis par la source pendant T	Y Nombre d'impulsions détectées dans la raie d'absorption totale	$\varepsilon = Y/X$ Efficacité de détection au niveau de la raie d'absorption totale
Solution B	70	2/12/62	840	55 368 580	19 732	$3,6 \cdot 10^{-4}$
Solution C	500	2/12/62	840	263 657 360	95 916	$3,61 \cdot 10^{-4}$

TABLEAU IX

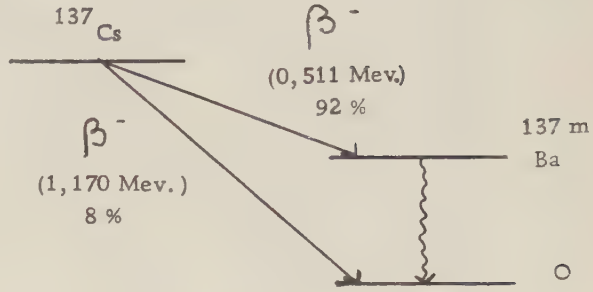
EXPERIENCES REALISEES AVEC DES SOLUTIONS RENFERMANT ^{137}Cs

- Activité de la solution étalon S utilisée : 0, 313 μ C/g $\pm$ 1, 5 % le 13/6/61

- 3 solutions ont été préparées A. B. C. Le solvant utilisé est de l'eau ajustée à pH : 1, 3 et renfermant du nitrate de Césium comme entraineur. Leur activité β se déduit du poids de S versée dans 12, 775 litres de solvant.

- Schéma de désintégration du ^{137}Cs

  . L'énergie du rayonnement γ est de 0, 660 MeV
  . Le facteur de conversion interne adopté étant e/ γ = 11, 7 %, 82 γ sont émis pour 100 désintégrations β .



	Poids de solution mis dans 12, 775 litres de solution (g)	T (minutes) Durée de la mesure	X Nombre de photons γ émis par la source pendant T	Y Nombre d'impulsions détectées dans la raie d'absorption totale	ε = Y/X Efficacité de détection au niveau de la raie d'absorption totale
Solution A	19, 2	840	9 130 800	7 957	$8,71.10^{-4}$
Solution B	61, 2	840	29 290 800	23 741	$8,10.10^{-4}$
Solution C	195, 5	840	93 567 600	76 483	$8,17.10^{-4}$

TABLEAU X

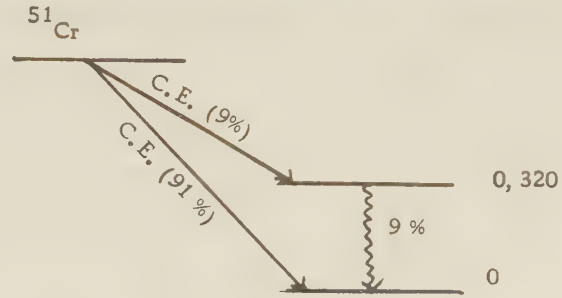
EXPERIENCES REALISEES AVEC DES SOLUTIONS RENFERMANT ^{51}Cr

- Activité de la solution étalon S utilisée 1, 3 mc/ml le 3/4/62

- Préparation des solutions étudiées : 0, 800 g de S est ajouté à Q. S. p. 1 000 ml d'eau distillée renfermant du sulfate de Chrome comme entraineur. A partir de cette solution A, nous réalisons deux solutions B et C de concentration différente en radioélément : un poids donné de S est versé dans 12, 775 litres de solvant.

- Schéma de désintégration du ^{51}Cr

  . L'énergie du rayonnement γ est de 0, 320 MeV
  . 9 photons γ sont émis pour 100 désintégrations
  . La période de ^{51}Cr est de 28 jours



	Poids de solution A mis dans 12, 775 litres de solvant (g)	Date de la mesure	T (minutes) Durée de la mesure	X Nombre de photons émis par la source T en tenant compte de la décroissance	Y Nombre d'impulsions détectées dans la raie d'absorption totale pendant T	$\varepsilon = Y/X$ Efficacité de détection au niveau de la raie d'absorption totale
Solution B	20	21/11/62	840	11 936 400	31 787	$2,67.\ 10^{-3}$
Solution C	40	22/11/62	840	23 295 082	62 755	$2,69.\ 10^{-3}$

points expérimentaux une courbe sensiblement parallèle à celle que nous avions obtenue précédemment (cf. FIGURE 31)

Nous sommes alors en possession d'un document permettant de connaitre l'efficacité de détection de l'ensemble de comptage au niveau de la raie d'absorption totale pour tous les radioéléments n'émettant qu'un groupe de photons γ d'énergie égale ou inférieure à 1,440 MeV.

1.2. Pour les nuclides se désintégrant avec l'émission de plusieurs groupes de photons γ il n'est pas possible de procéder ainsi. Nous nous sommes contentés de déterminer pour des sources d'activité connue la hauteur exprimée en impulsions par unité de temps, de la raie correspondant à l'énergie du rayonnement γ le plus important. Lors de la mesure d'une solution d'activité inconnue, il suffira de se reporter à ces déterminations pour connaitre la richesse en ces radioéléments.

Nous avons étudié ainsi ^{131}I, ^{144}Ce - ^{144}Pr, ^{106}Ru - ^{106}Rh.

Les spectres obtenus sont consignés dans les FIGURES 32 et 34.

2. Limite de détection pour une mesure précise.

Une conclusion s'impose à la suite de l'expérience précédente. Le détecteur ne compte dans les conditions expérimentales choisies que très peu de photons γ émis par la source : de l'ordre de 3 pour 10 000 aux énergies élevées (^{40}K = 1,460 MeV par exemple) et de 2 à 3 pour 1 000 aux plus faibles énergies (0,310 MeV = ^{51}Cr). On conçoit dès lors la difficulté de réaliser des mesures de faibles activités. C'est pourquoi il est nécessaire de déterminer maintenant quelle est la concentration minima en chaque radioélément que l'on peut détecter avec précision.

Pour cela nous complètons les expériences décrites dans le paragraphe précédent en effectuant des comptages sur des solutions de moins en moins actives et ceci jusqu'à ce que l'erreur faite sur la mesure soit inférieure ou égale à 20 % (intervalle de sécurité de 2 écarts types.)

Nous avons réalisé cette expérience pour ^{40}K, ^{65}Zn, ^{106}Ru - ^{106}Rh, ^{137}Cs, ^{51}Cr, ^{144}Ce - ^{144}Pr, ^{131}I (cf. FIGURES 32, 34, 35, 36, 37, 38)

2.1. Les spectres γ obtenus pour ^{40}K avec les quatre premières solutions se situent dans leur ensemble au dessus de la limite tandis qu 'une erreur supérieure à 20 % affecte le comptage de la dernière solution. La distribution obtenue dans ce cas a des limites assez mal définies même au niveau de la raie d'absorption totale qu'il est difficile d'identifier et de déterminer la surface exacte.

L'activité minimum détectable, pour une durée de mesure de 1 680 minutes, se trouve donc comprise entre 109 et 438 γ émis par minute dans un litre de solution. Nous la fixons volontairement à 400.

2.2. En ce qui concerne ^{65}Zn, un comptage effectué en 840 minutes sur deux solutions d'activité assez différentes révèle que la hauteur de la raie d'absorption totale, obtenue pour la plus faible concentration, pourrait être encore réduite (d'un facteur 8 environ) tout en maintenant une précision de mesure satisfaisante. Ceci permet d'établir la limite de détection à 600 photons émis par minute dans un litre de solution.

2.3. Avec ^{137}Cs, pour des mesures réalisées en 840 minutes, le nombre d'impulsions enregistrées dans chaque canal est supérieur à la valeur limite dans toutes les expériences à l'exception de la dernière. L'ensemble de comptage permet donc de mesurer en 14 heures une activité comprise entre 285 et 911 photons γ par minute dans un litre de solution.

2.4. ^{106}Rh en équilibre radioactif avec ^{106}Ru émet deux groupes principaux de photons γ (énergies = 0,511 et 0,620 MeV). Ceci explique pourquoi il faudra opérer sur des solutions assez actives (1 480 photons γ émis par minute dans un litre de solution) pour pouvoir identifier avec précision les deux raies d'absorption totale des distributions obtenues.

2.5. Les trois spectres présentés pour ^{131}I se situent bien au dessus du taux de comptage critique. La principale raie (0,360 MeV) pourrait avoir une hauteur de deux à trois fois plus faible. Nous pensons donc qu'il est possible de détecter avec notre ensemble de comptage l'émission de 500 à 600 photons γ par minute dans un litre de solution pour une durée de mesure de 840 minutes.

2.6. Il en est de même pour ^{51}Cr dont on peut fixer, à la vue des spectres obtenus la limite de détection à 400 photons γ par minute dans un litre de solution (durée de la mesure : 840 minutes).

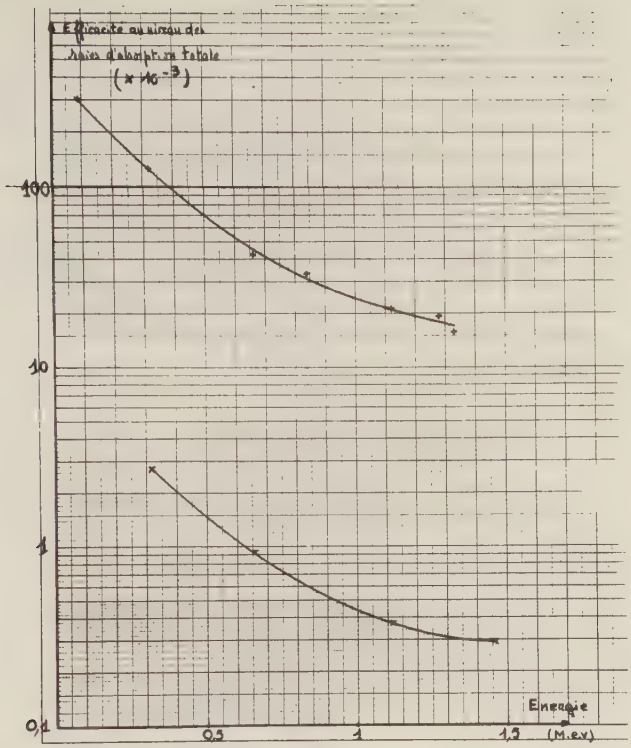


FIGURE 3I

Efficacité de détection des photons γ
en fonction de leur énergie.

Résultats obtenus sur les sources minces

Résultats obtenus sur 12,775 litres de solution

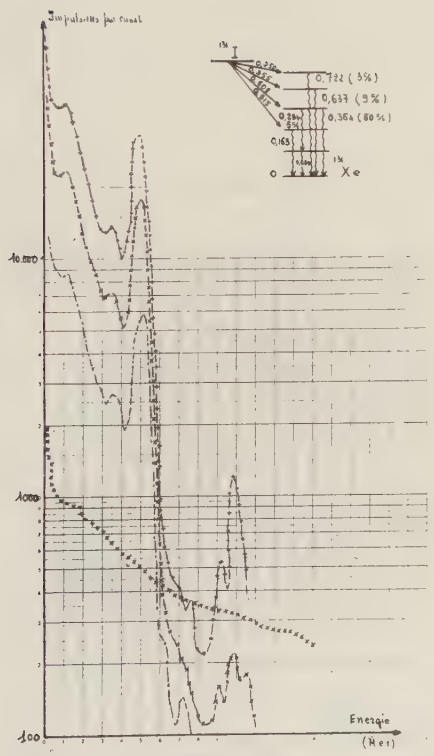


FIGURE 32

SPECTRES γ OBTENUS SUR 3 SOLUTIONS
RENFERMANT DES CONCENTRATIONS DIFFERENTES EN ^{131}I

—+—+— I 680 PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
—x—x— II 275 PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
—o—o— III 180 PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION

xxxxx : NOMBRE D'IMPULSIONS A COMPTER PAR CANAL POUR QUE L'ERREUR AFFECTANT LA MESURE SOIT ≤ 20 %
(DUREE DE LA MESURE : 840 MINUTES)

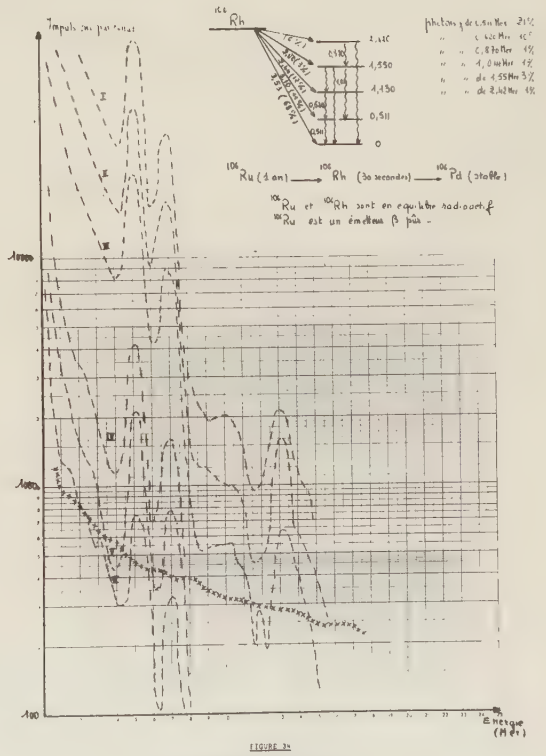


FIGURE 34

SPECTRES γ OBTENUS SUR DES SOLUTIONS
RENFERMANT DES CONCENTRATIONS DIFFERENTES EN ^{106}Ru - ^{106}Rh

SPECTRE I	23 600	PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
SPECTRE II	12 800	PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
SPECTRE III	5 900	PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
SPECTRE IV	1 480	PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
SPECTRE V	740	PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
SPECTRE VI	230	PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION

xxxx : NOMBRE D'IMPULSIONS A COMPTER PAR CANAL POUR QUE L'ERREUR AFFECTANT LA MESURE SOIT ≤ 20 %.
(DUREE DE LA MESURE : 840 MINUTES)

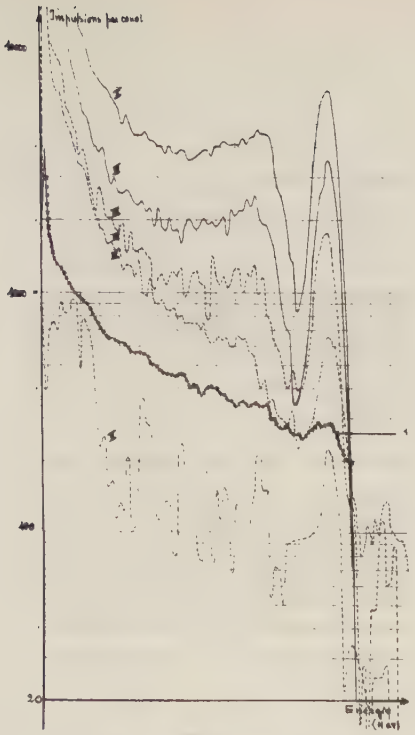


FIGURE 26

SPECTRES γ OBTENUS SUR 5 SOLUTIONS
RENFERMANT DES CONCENTRATIONS DIFFERENTES EN ^{60}Co

SPECTRE I 7 000 PHOTONS EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
SPECTRE II 3 900 PHOTONS EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
SPECTRE III I 750 PHOTONS EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
SPECTRE IV 440 PHOTONS EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
SPECTRE V 110 PHOTONS EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION

aaaaa : NOMBRE D'IMPULSIONS A COMPTER PAR CANAL POUR QUE L'ERREUR AFFECTANT LA MESURE SOIT ≤ 20 %.
(DUREE DE LA MESURE : I 650 MINUTES)

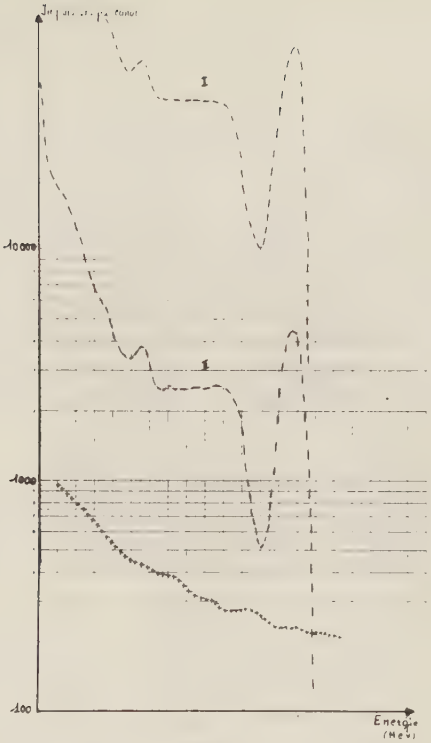


FIGURE 25

SPECTRES γ OBTENUS SUR 5 SOLUTIONS
RENFERMANT DES CONCENTRATIONS DIFFERENTES EN ^{51}Cr

SPECTRE I ... PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
SPECTRE II ... PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION

aaaaa: NOMBRE D'IMPULSIONS A COMPTER PAR CANAL POUR QUE L'ERREUR AFFECTANT LA MESURE SOIT ≤ 20 %
(DUREE DE LA MESURE : 840 MINUTES)

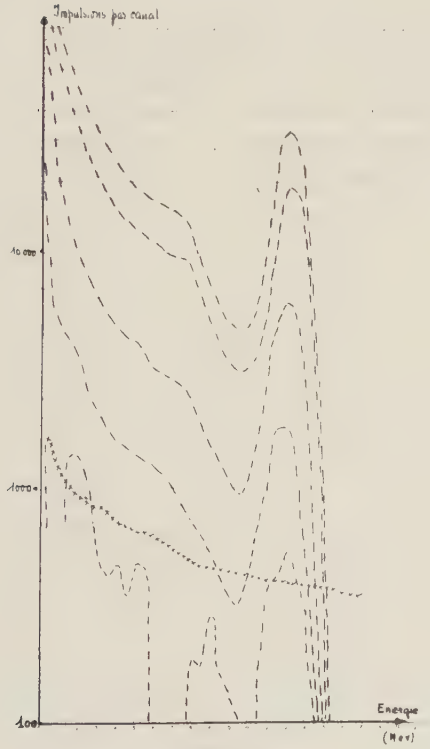


FIGURE 27

SPECTRES γ OBTENUS SUR 5 SOLUTIONS
RENFERMANT DES CONCENTRATIONS DIFFERENTES EN ^{137}Cs

SPECTRE I 27 653 PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
SPECTRE II 9 284 PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
SPECTRE III 2 909 PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
SPECTRE IV 931 PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION
SPECTRE V 285 PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION

aaaaa : NOMBRE D'IMPULSIONS A COMPTER PAR CANAL POUR QUE L'ERREUR AFFECTANT LA MESURE SOIT ≤ 20 %
(DUREE DE LA MESURE : 840 MINUTES)

FIGURE 28

SPECTRES γ OBTENUS SUR 2 SOLUTIONS
RENFERMANT DES CONCENTRATIONS
DIFFERENTES EN ^{51}Cr

SPECTRE I I 110 PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION

SPECTRE II 2 200 PHOTONS γ EMIS PAR MINUTE DANS UN LITRE DE SOLUTION

aaaaa: NOMBRE D'IMPULSIONS A COMPTER PAR CANAL POUR QUE L'ERREUR AFFECTANT

2.7. Enfin, en ce qui concerne ^{144}Ce - ^{144}Pr, leur schéma de désintégration assez complexe fait que les différents auteurs ne sont pas d'accord sur l'importance relative des différents groupes de photons γ émis. Pour notre étude nous considérons qu'à 100 désintégrations de ^{144}Ce correspondent 10 photons γ de 0,133 MeV. C'est sur la raie correspondant à cette énergie que nous établissons la limite de détection. Celle-ci se situe à 300 photons γ par minute dans un litre de solution, pour une durée de mesure de 840 minutes.

Nous avons regroupé dans le TABLEAU XI les résultats obtenus avec les différents radioéléments étudiés qui à l'exception de ^{65}Zn et de ^{51}Cr risquent de contaminer les eaux.

En conclusion, ces résultats ne sont pas très satisfaisants. En effet, même pour des comptages longs, qui ne permettent plus dès lors d'appliquer cette technique à des contrôles rapides et en série, on ne détecte pas de faibles activités dans les eaux.

Ceci ne provient pas du bruit de fond de l'ensemble de comptage ni de la constitution de la source mais de la faible efficacité de détection du scintillateur employé. Il est donc nécessaire de prévoir l'utilisation d'un plus gros cristal d'INa(Tl) pour améliorer les performances de notre dispositif de mesure.

T A B L E A U XI

Activité minimum détectable avec l'ensemble de comptage utilisé

Détecteur à cristal INa(Tl) 2,5 × 3,75 cm
Source : échantillon d'eau de 12,775 litres enfermée dans la bonbonne sphérique
Activité exprimée en nombre de photons γ émis par minute dans un litre de l'échantillon.

Elément	Energie des photons γ (MeV)	Durée de la mesure (minutes)	Nombre de photons γ émis par minute dans un litre d'échantillon
^{40}K	1,460	1 680	400
^{65}Zn	1,114	840	600
^{137}Cs	0,661	840	500
^{106}Ru - ^{106}Rh	0,620	840	1 480
^{131}I	0,361	840	500-600
^{51}Cr	0,320	840	400
^{144} e - ^{144}Pr	0,133	840	300

CHAPITRE V

Etude des spectres complexes obtenus dans le cas d'un mélange de radioéléments. Elimination des distributions Compton

---

Jusqu'à maintenant toutes nos expériences ont porté sur la mesure de l'activité de solutions ne contenant qu'un radioélément de nature connue. Dans ce cas, très favorable, le problème ne présente pas de difficulté.

Il en va autrement dans la détermination de la radioactivité des eaux : celles-ci, nous l'avons vu, risquent d'être contaminées par des produits de fission dont on ne peut à priori prévoir la nature exacte et l'importance respective. Il faut donc s'attendre à obtenir des spectres γ présentant une grande complexité et difficiles à analyser : les raies d'absorption totale risquent d'empiéter les une sur les autres ; dans les cas extrêmes certaines peuvent en masquer complètement d'autres ; enfin, la plupart du temps leur hauteur et leur superficie seront perturbées par des distributions parasites (Compton, pic de rétrodiffusion etc...)

D'autre part, on ne peut construire à priori, comme ce serait le cas si l'on avait toujours à faire aux mêmes éléments, un spectre type qu'il suffirait de comparer pour une étude qualitative et même quantitative, avec ceux que l'on obtient expérimentalement.

C'est pourquoi il est indispensable d'avoir à sa disposition un procédé qui permette le dépouillement de ces spectres complexes et l'exploration des renseignements qu'ils renferment.

Nous avons exposé assez longuement, dans la première partie de ce travail, les méthodes qu'utilisent les

différents auteurs qui ont abordé le problème. Certaines de celles-ci ne peuvent pas être employées :

- soit qu'elles ne conviennent pas aux appareils dont nous disposons ou à l'ensemble de comptage mis au point ; nous rangeons dans ce groupe toutes celles qui font appel à des montages en coïncidence ou en anticoïncidence.

- soit qu'elles s'appliquent uniquement à l'analyse de mélanges connus d'émetteurs .

En fin de compte, on peut hésiter entre deux méthodes : celle décrite par CONNALY et qui consiste à soustraire progressivement du spectre complexe les différentes distributions simples qui le composent. On effectue cette opération sans grossières erreurs manuellement ou à l'aide d'une machine à calculer si après avoir identifié les différentes raies, l'on dispose de sources étalons des éléments présents dans l'échantillon. Chaque soustraction entraine néanmoins une certaine inexactitude et la méthode perd beaucoup de sa valeur dès que l'on doit analyser plus de 5 ou 6 raies d'absorption totale.

C'est pourquoi nous avons préféré adopter le procédé moins restrictif que décrit PEIRSON.

Rappelons en brièvement le principe : les photons γ d'énergie comprise entre 0,200 et 2,500 MeV réagissent

- dans un cristal d'INa(Tl) essentiellement par effet photoéléctrique et effet Compton, peu par effet de paire.

- dans un cristal d'anthracène uniquement par effet Compton.

Si l'on expose une source de photons γ à deux sondes, l'une à INa(Tl), l'autre à anthracène, chacune reliée à un spectromètre, on obtient :

- avec la première le spectre décrit plus haut (spectre n°I) constitué essentiellement d'une raie d'absorption totale, d'une distribution Compton, éventuellement d'un pic de rétrodiffusion.

- avec l'autre, un spectre (spectre n°II) composé uniquement de la distribution Compton.

En soustrayant alors II de I on ne laisse subsister dans I que les raies correspondant à une absorption totale des photons γ dans le cristal.

J. HOSTE et D. de SOETE reprenant ce procédé remplacent le cristal d'anthracène par un scintillateur plastique qui possède des propriétés identiques vis à vis

des photons γ mais présente de plus certains avantages : peu fragile, il se laisse facilement travailler, ce qui permet de l'obtenir sous différentes formes et en de grandes dimensions. Son prix de revient, enfin, est bien inférieur à celui d'un cristal d'anthracène.

Nous avons eu connaissance des résultats obtenus par ce procédé à la Section d'Applications des Radioéléments du Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble. Ceux-ci nous ont incité à monter au Laboratoire une sonde à scintillateur plastique et à envisager son intégration dans notre ensemble de comptage.

1. Nous décrivons dans la FIGURE 39 les principales caractéristiques de cette sonde : le plastique scintillant (fabriqué par la maison Quartz et Silice) cylindrique et d'assez grande dimension (110 mm de diamètre et de hauteur), enveloppé de plexiglass noir de 2 mm d'épaisseur est accolé à l'aide d'une graisse siliconée à un photomultiplicateur 54 AVP entouré de mu-métal et logé dans un boitier d'acier B. Celui-ci renferme également un préamplificateur transistorisé qui transmet au spectromètre les impulsions électriques reçues du photomultiplicateur.

2. L'emploi de ce détecteur (II) en association avec celui qui renferme le cristal d'INa(Tl) (I) n'a de valeur et ne donne des résultats satisfaisants que si les distributions Compton fournies par chacun d'eux sont exactement superposables.

Ceci implique :

- que pour une même quantité d'énergie abandonnée par un photon dans l'un et l'autre des scintillateurs, l'impulsion électrique délivrée par chacune des sondes soit de même hauteur : c'est l'ajustement des distributions en énergie.

- que le nombre d'impulsions enregistrées pour chacun des canaux dans lesquels se logent les distributions Compton soit le même avec les 2 sondes : c'est l'ajustement des distributions en comptage.

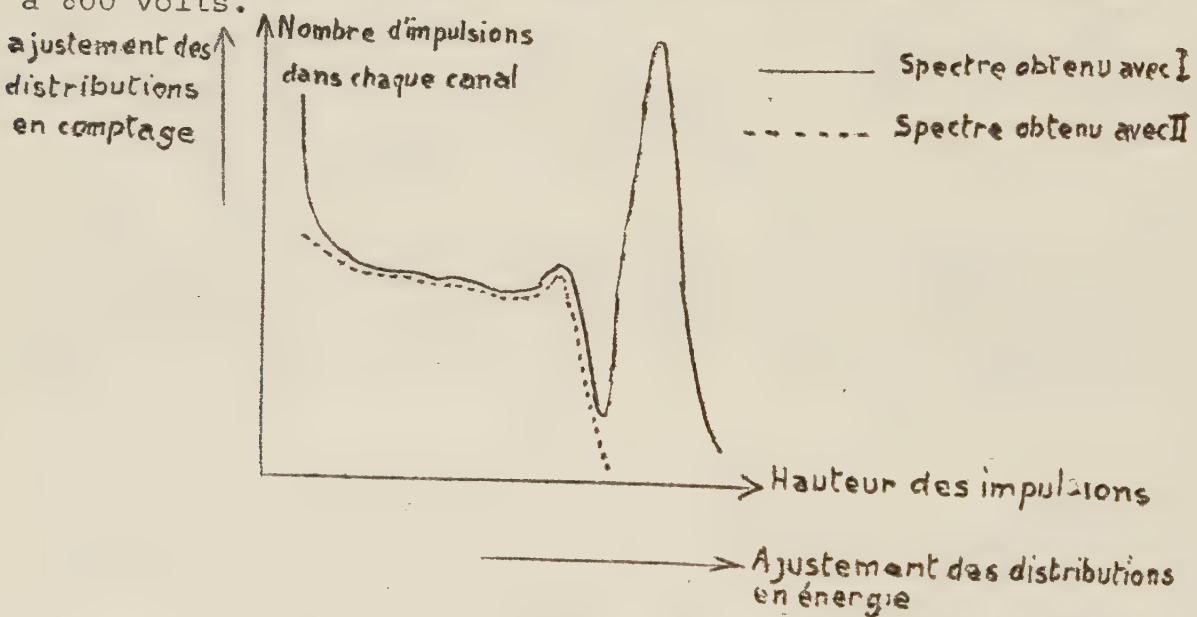
2.1. L'ajustement des distributions Compton en énergie parait à première vue simple et facile à réaliser. Il suffit en principe de déterminer la valeur de la haute tension à appliquer à chacune des sondes pour que le sommet des deux fronts Compton coïncident.

En pratique, cette opération est souvent délicate à réaliser et nécessite un certain temps. En effet,

si l'on veut effectuer un règlage précis qui conditionne l'exactitude des mesures futures, il faut opérer par essais successifs en faisant varier progressivement et lentement la haute tension de l'une des sondes alors que l'autre reste constante. Ce n'est que dans ces conditions que l'on peut espérer obtenir des résultats satisfaisants. Pour l'ensemble de comptage utilisé, les meilleures valeurs de haute tension sont :

- avec la sonde à cristal INa(Tl) (I) de 800 volts
- avec la sonde à scintillateur plastique (II) de 1 500 volts.

Afin de pouvoir employer la même source de courant pour les 2 détecteurs (haute tension stabilisée incluse dans le spectromètre γ) nous fixons sa valeur à 1 500 volts et alimentons directement II. I est muni d'un potentiomètre variable qui chute la tension de 1 500 volts à 800 volts.



Nous avons vérifié que cet ajustement effectué pour un émetteur γ déterminé (^{137}Cs) est valable pour tous les autres dont l'énergie des photons est comprise entre 0,100 et 2,000 MeV. On peut par suite effectuer dans un spectre complexe la soustraction des différentes distributions Compton sans craindre de mauvais résultats. Signalons enfin que ce règlage doit être vérifié assez souvent car des phénomènes de dérive, décrits plus haut, peuvent apparaitre dans l'une ou l'autre des sondes.

2.2. Le comptage du même nombre d'impulsions dans les deux distributions Compton ne constitue pas un problème délicat à résoudre. Il suffit de connaitre l'efficacité de détection de chacun des compteurs et d'en tenir compte.

C'est ainsi que nous avons constaté que pour les conditions de mesure choisies (sources minces Tracerlab de 23 mm de diamètre, placées entre les deux scintillateurs, à 5 cm de chacun d'eux) l'efficacité de détection de II est trois fois supérieure à celle de I.

Pour obtenir en des temps égaux des taux de comptages identiques avec les 2 appareils, il suffit d'éloigner la source de II tout en maintenant constante sa distance vis à vis de I. C'est ce que font les différents auteurs. Nous n'avons pas adopté ce procédé car dans les mesures que nous devons effectuer sur les eaux, les deux sondes ont une position fixe et invariable au sein de l'échantillon. C'est pourquoi nous avons préféré modifier les durées des comptages et effectuer les mesures avec II en un temps trois fois plus faible qu'avec I.

Comme dans le cas précédent, ces conditions fixées sur une source de rayonnement γ (^{137}Cs) conviennent parfaitement aux autres, quelque soit l'énergie des photons émis.

En conclusion, l'ajustement des distributions Compton fournies par les deux sondes se résume en fin de compte à une série d'essais, plus ou moins nombreux selon les cas mais qui doivent être réalisés avec le plus grand soin. Ils conditionnent dans une grande partie l'exactitude des mesures et la validité de cette méthode.

2.3. Lors de cette mise au point, nous nous sommes heurtés à une difficulté sur laquelle nous devons insister maintenant. Elle nous a retenu assez longtemps et tous ceux que le problème intéresse risquent de la rencontrer à leur tour.

Les pentes des fronts Compton obtenus avec I et II ne sont pas identiques, l'une (II) est beaucoup plus douce que l'autre (I) et empiète même sur la raie d'absorption totale obtenue avec I(cf. FIGURE 40).

Il s'en suit que lorsqu'après avoir réalisé l'ajustement des distributions Compton en énergie au niveau du sommet des fronts Compton on effectue la soustraction du spectre II de I, on supprime un certain nombre d'impulsions appartenant à la raie d'absorption totale. Ceci entraine des modifications dans la forme, la hauteur et la surface de cette raie qui constituent une cause d'erreur dans son identification et son appréciation quantitative. Ajoutons enfin que ce phénomène prend de plus en plus d'importance au fur et à mesure que décroit l'énergie des photons étudiés : peu marqué pour des photons de 1,500 MeV, il s'accentue considérablement aux énergies faibles. J. HOSTE et D. de SOETE ont rencontré la même difficulté dans la

mise au point de leur ensemble de comptage. Ils préconisent, pour y remédier, la collimation des deux détecteurs : les bords du cristal d'INa(Tl) sont protégés par une couronne de plomb de 2,5 cm d'épaisseur tandis qu'un écran de même nature percé de trous de 0,9 cm de diamètre recouvre le scintillateur plastique : nous avons eu connaissance des résultats obtenus dans ces conditions : les spectres excellents révèlent des fronts Compton aux pentes sensiblement identiques. Ce procédé offre, néanmoins, le désavantage de réduire d'une façon sensible l'intensité du faisceau de photons γ qui rencontrent les scintillateurs puisqu'une partie de ceux-ci sont arrêtés par les écrans. Nous proposant de mesurer sur l'eau de très faibles activités, nous ne pouvons adopter ce montage qui réduirait encore l'efficacité de comptage.

Il fallait donc envisager une autre solution. La modification des tensions appliquées aux photomultiplicateurs, l'utilisation de scintillateurs plastiques de différentes dimensions (même diamètre mais hauteur variable : de 10 à 120 mm) n'ont apporté aucune amélioration dans la forme des spectres. Nous avons alors adopté un procédé empirique qui à l'usage nous a donné d'assez bons résultats. Son principe est le suivant : si l'on déplace légèrement du côté des basses énergies la distribution Compton fournie par le plastique scintillant (II) celle-ci n'empiète plus ou très peu sur la raie d'absorption totale de I. On supprime ainsi l'inconvénient mentionné plus haut. Par contre, les sommets des deux fronts Compton ne sont plus exactement superposables (cf. FIGURE 41). Il se crée entre eux un certain décalage, d'autant plus important d'ailleurs que l'énergie des photons γ est plus faible. Dans ce cas, par élimination de la distribution Compton du spectre I, on supprime beaucoup moins d'impulsions appartenant à la raie d'absorption totale ; par contre, on en laisse certaines en amont de celle-ci, ce qui se traduit en fin de compte par l'apparition de petites "bosses".

Ce phénomène beaucoup moins gênant que le précédent, ne provoque pas de perturbation dans l'étude des spectres même complexes.

Nous donnons à titre d'exemple les résultats obtenus suivant ce procédé sur quatre émetteurs γ pris isolément ainsi que sur un mélange de ceux-ci. Nous avons fait figurer le spectre donné par la sonde à cristal INa (Tl) (I) avant et après soustraction des distributions Compton. (cf. FIGURES 42, 43, 44, 45, 46)

L'observation des courbes permet certaines remarques. La suppression de la distribution Compton

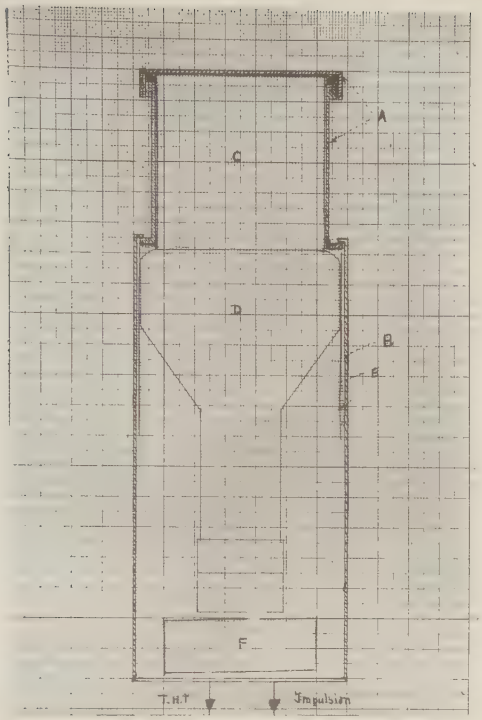


FIGURE 39

Sonde à scintillateur plastique

A : enveloppe de plexiglas noir entourant le scintillateur plastique C
B : boitier inox
D : tube photomultiplicateur 54 AVP
E : mu métal
F : préamplificateur.

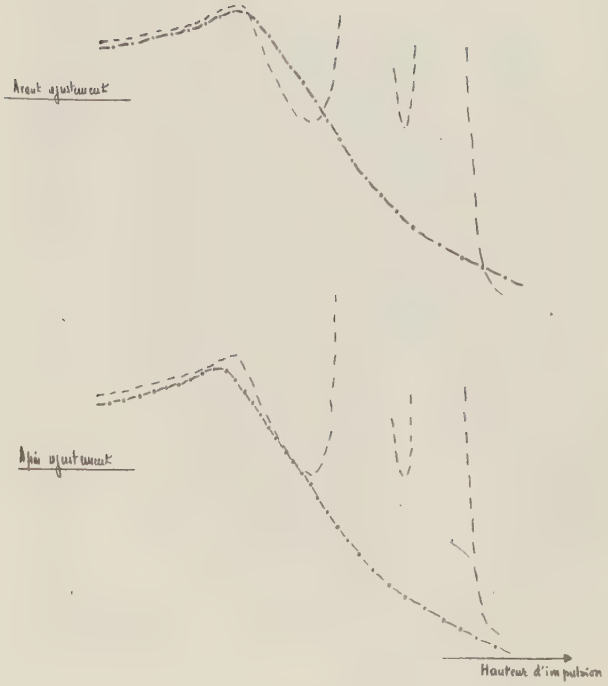


FIGURE 41

Ajustement des pentes des distributions Compton données
- par la sonde a cristal INa(Tl) — — — — —
- par la sonde à scintillateur plastique — · — · —

(Etude faite sur une source de ^{60}Co)

FIGURE 40 a

FIGURE 40 b

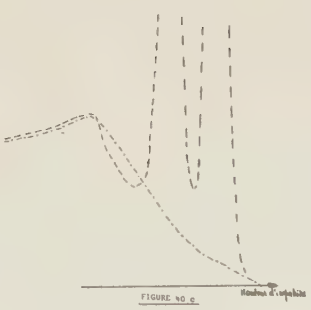


FIGURE 40 c

FIGURE 40

Pente des distributions Compton obtenues avec
- le détecteur à cristal INa(Tl) — — —
- le détecteur à scintillateur plastique — · — · —

Figure 40 a : spectre γ de ^{137}Cs
Figure 40 b : spectre γ de ^{54}Mn
Figure 40 c : spectre γ de ^{60}Co

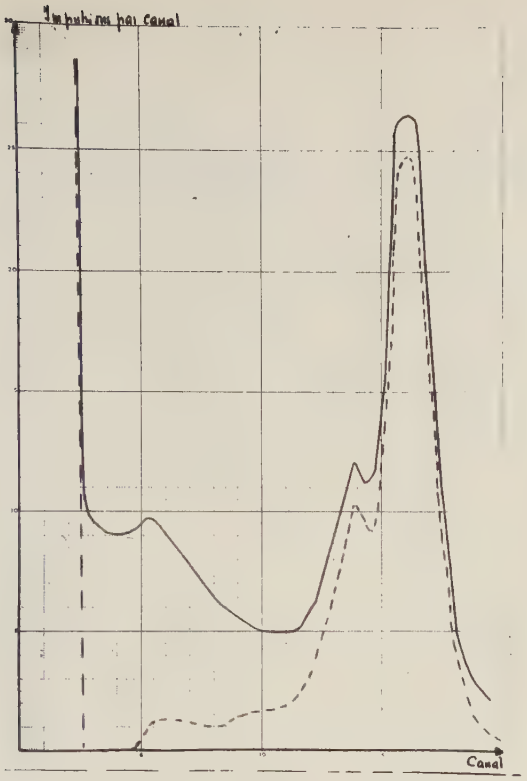


FIGURE 42

SPECTRE γ OBTENU SUR UNE SOURCE MINCE DE ^{133}Ba A L'AIDE DU DETECTEUR A CRISTAL INa(Tl)

——— avant soustraction de la distribution Compton
– – – – après soustraction de la distribution Compton
à l'aide du détecteur à scintillateur plastique

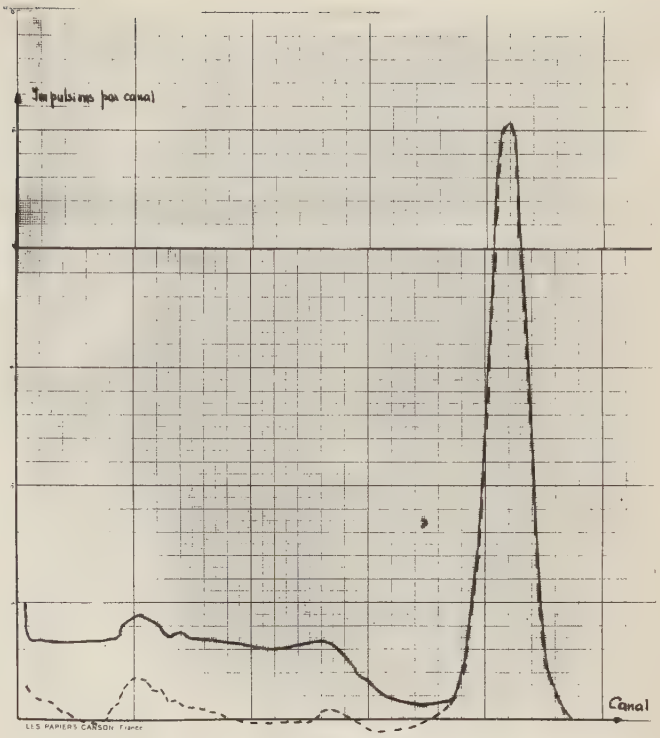


FIGURE 43

Spectre γ obtenu sur une source mince de ^{137}Cs à l'aide du détecteur à cristal INa(Tl)

——— avant soustraction de la distribution Compton
– – – – après soustraction de la distribution Compton
à l'aide du détecteur à scintillateur plastique

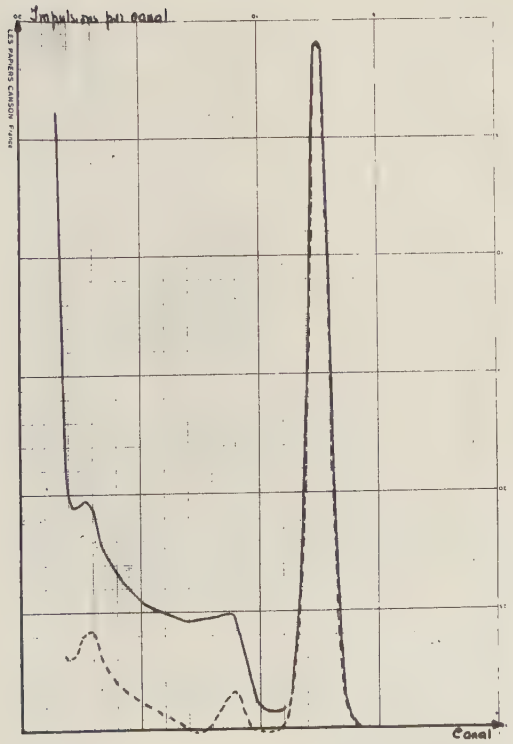


FIGURE 44

SPECTRE X OBTENU SUR UNE SOURCE MINCE DE ^{54}Mn A L'AIDE DU DETECTEUR A CRISTAL INa(Tl)

——— avant soustraction de la distribution Compton
– – – – après soustraction de la distribution Compton
à l'aide du détecteur à scintillateur plastique.

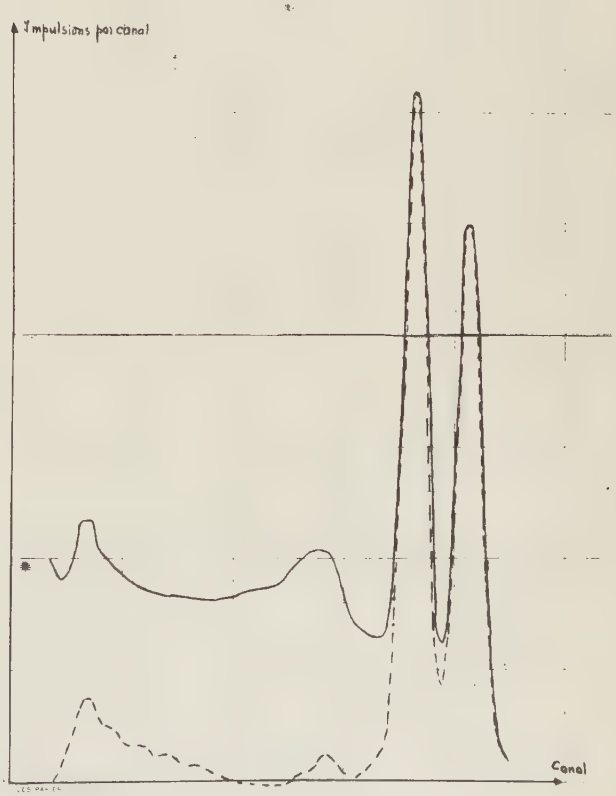


FIGURE 45

SPECTRE γ OBTENU SUR UNE SOURCE MINCE DE ^{60}Co A L'AIDE DU DETECTEUR A CRISTAL INa(Tl)

——— AVANT SOUSTRACTION DE LA DISTRIBUTION COMPTON
– – – – APRES SOUSTRACTION DE LA DISTRIBUTION COMPTON
A L'AIDE DU DETECTEUR A SCINTILLATEUR PLASTIQUE

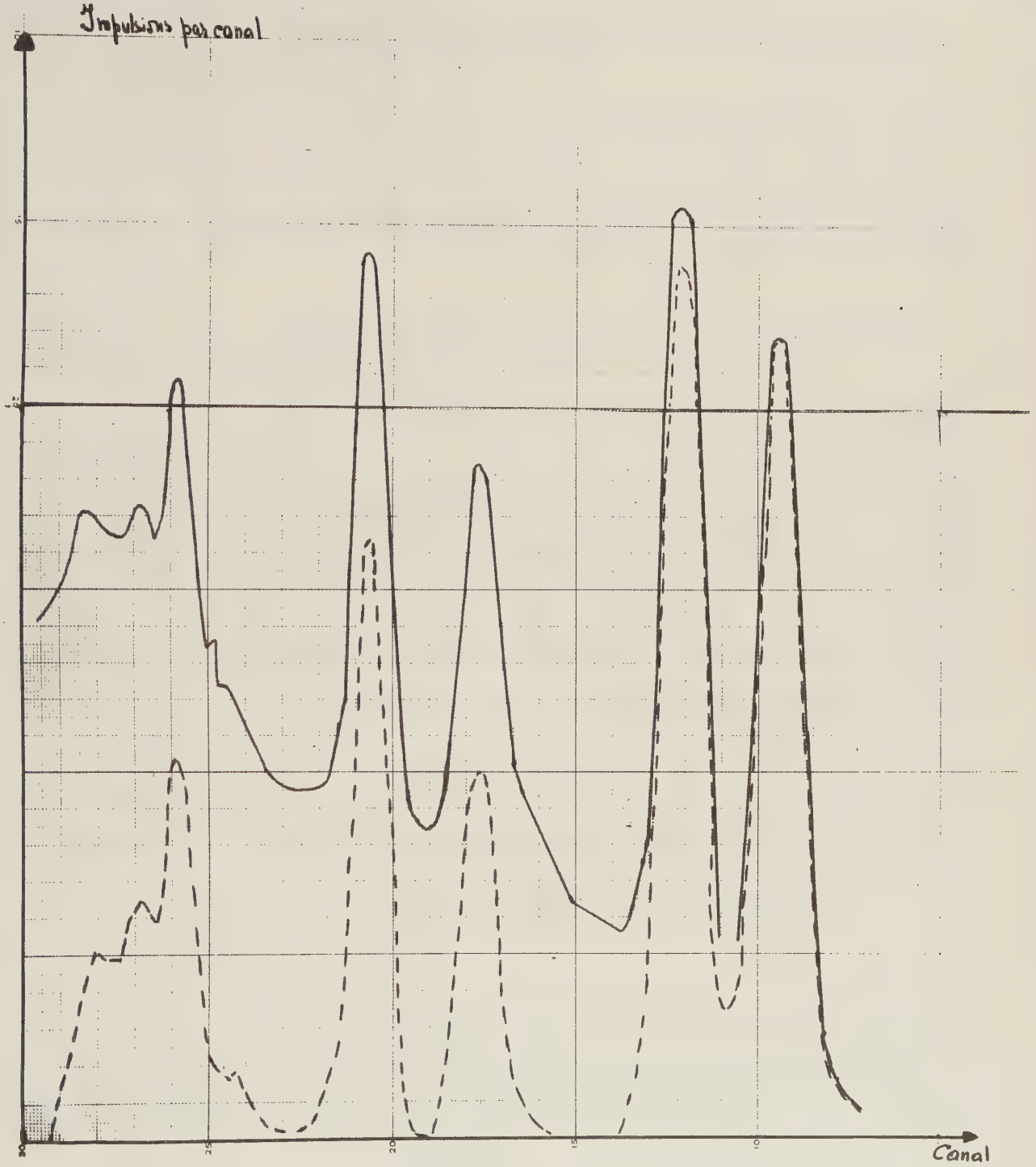


FIGURE 46

SPECTRE γ OBTENU A L'AIDE DU DETECTEUR A CRISTAL INa(Tl) SUR UNE SOURCE MINCE RENFERMANT ^{133}Ba, ^{137}Cs, ^{54}Mn, ^{60}Co

——— AVANT SOUSTRACTION DES DISTRIBUTIONS COMPTON

– – – – APRES SOUSTRACTION DES DISTRIBUTIONS COMPTON

A L'AIDE D'UN DETECTEUR A SCINTILLATEUR PLASTIQUE

- n'affecte que très peu la surface des raies d'absorption totale quelque soit l'énergie à laquelle elles correspondent.

- ne laisse en amont de celles-ci qu'un nombre restreint d'impulsions parasites.

- ne touche pas les raies de rétrodiffusion. Il en sera d'ailleurs de même pour les raies d'annihilation puisque celles-ci proviennent de l'absorption totale dans le cristal d'INa(Tl) de photons γ d'énergie déterminée.

En conséquence, nous pensons que ce procédé peut être adapté sans réserve. Le mode opératoire que nous préconisons pour l'appliquer est le suivant :

Avant d'effectuer toute mesure, il est nécessaire d'ajuster ou de vérifier l'ajustement des distributions Compton en énergie. Cette opération s'effectue sur une source de photons γ, d'énergie élevée (1,500 MeV ou plus), disposée dans des conditions géométriques précises vis à vis des détecteurs. On effectue alors la mesure sur l'échantillon à étudier en plaçant celui-ci dans les mêmes conditions de géomètrie.

- on enregistre en additions le spectre donné par le détecteur à cristal INa(Tl) I en une durée T_1.

- on passe en soustraction pour effectuer le comptage du bruit de fond de I en une même durée T_1.

- on enregistre, toujours en soustraction, le spectre fourni par le détecteur à plastique scintillant (II) en une durée $T_2 = T_1/3$. Cette opération a pour effet de supprimer la distribution Compton du spectre de I.

- on passe enfin en addition et on réalise le comptage du bruit de fond de II en une même durée $T_2 = T_1/3$.

En conclusion, l'emploi de cette sonde à scintillateur plastique à laquelle on donne le nom de détecteur Anti-Compton, simplifie considérablement l'étude des spectres complexes qui se trouvent réduits à une série de raies de hauteur et surface bien définies puisqu'aucune distribution Compton ne les perturbe.

On peut dès lors connaitre la composition qualitative et quantitative de n'importe quelle source de photons γ. Il suffit pour cela que :

- les différentes raies soient assez séparées les unes des autres pour qu'aucune confusion ne soit possible.

- l'on connaisse au préalable au niveau de ces raies, l'efficacité de détection. Celle-ci diffère naturellement de celle que nous avions déterminée sur les spectres possèdant leur distribution Compton puisque la soustraction diminue légèrement la hauteur des différentes raies. Il faut donc la calculer de nouveau sur un certain nombre de sources étalons. A partir des résultats expérimentaux obtenus on peut tracer la courbe de l'efficacité en fonction de l'énergie et s'y reporter chaque fois que le cas se présente.

CHAPITRE VI

Description de l'ensemble de mesure définitif

A la suite des quatre séries d'expériences que nous venons de relater il est bon de faire le bilan des différents résultats obtenus : certains sont satisfaisants, d'autres beaucoup moins. Le but de notre travail n'est pas encore atteint puisque les activités que l'on a pu mesurer avec précision sur les eaux sont supérieures aux C.M.A.P. Ceci nous conduit à envisager les modifications à apporter à l'ensemble de comptage pour améliorer ses performances.

1.1. Le détecteur à INa(Tl) utilisé possède une résolution en énergie assez médiocre et une faible efficacité de comptage qui est dûe au cristal de petite taille.

C'est pourquoi il est indispensable en premier lieu de prévoir son remplacement par un autre plus gros : 7,5 cm de diamètre et 7,5 cm de hauteur. Ces dimensions suffisent. Elles améliorent considérablement le comptage des impulsions, surtout au niveau des raies d'absorption totale, tout en permettant de conserver une bonne résolution.

1.2. La forme sphérique des bonbonnes semble préférable aux autres. Toute la source est "vue" de la même façon par le détecteur et on peut effectuer les mesures sur d'importants volumes d'eau sans que la forme des spectres s'en trouve trop affectée.

Nous conservons donc ces récipients tout en leur apportant les modifications nécessaires à l'utilisation d'une sonde à INa(Tl) plus grosse et du détecteur anti-Compton. Celui-ci, après une mise au point assez laborieuse donne toute satisfaction.

1.3. L'étude du blindage a montré qu'une épaisseur de 5 cm de Plomb entourant complètement l'ensemble de comptage diminue suffisamment le bruit de fond pour que cette épaisseur soit retenue. D'autre part, les dimensions de la chambre ont été choisies pour que la source comme le détecteur soient situés à une distance relativement grande des parois de façon à limiter les phénomènes de rétrodiffusion.

2. De tout ceci il ressort que les modifications à envisager portent essentiellement
- sur les dimensions du cristal INa(Tl)
- sur le récipient
- sur la chambre blindée.

2.1. Le détecteur choisi, fabriqué par HARSHAW, possède certaines qualités indispensables à son utilisation en spectrométrie fine à faible bruit de fond.

2.1.1. Le cristal INa(Tl) de 7,5 cm de diamètre et de 7,5 cm de haut a une teneur en potassium inférieure à 1 ppm.

2.1.2. Il est relié à un photomultiplicateur R.C.A. par l'intermédiaire d'un guide de lumière constitué par un deuxième cristal d'INa, de 7,5 cm de diamètre et 5 cm de haut dont le rôle est double : il réduit l'angle sous lequel le cristal INa(Tl) est vu de n'importe quel point du photomultiplicateur et abaisse ainsi le bruit de fond dû au potassium contenu dans l'enveloppe du photomultiplicateur. D'autre part, il absorbe à raison de 50 % toutes les radiations γ émises par le potassium, quelque soit son origine.

2.1.3. L'emploi d'une fenêtre optique en quartz et le montage de l'ensemble dans un boitier d'acier dénué de toute activité propre font que le bruit de fond est réduit au minimum.

2.1.4. Enfin cette sonde est équipée de 2 potentiomètres permettant d'ajuster la T.H.T. appliquée au photomultiplicateur et la tension de la grille de focalisation dont dépend, dans une large mesure, la résolution du détecteur. Nous avons étudié cette résolution pour différentes énergies après l'avoir rendue minimum pour la raie de ^{137}Cs.

Les résultats comparés à ceux que nous avions obtenus avec la sonde munie d'un petit cristal d'INa(Tl) sont consignés dans la FIGURE 47.

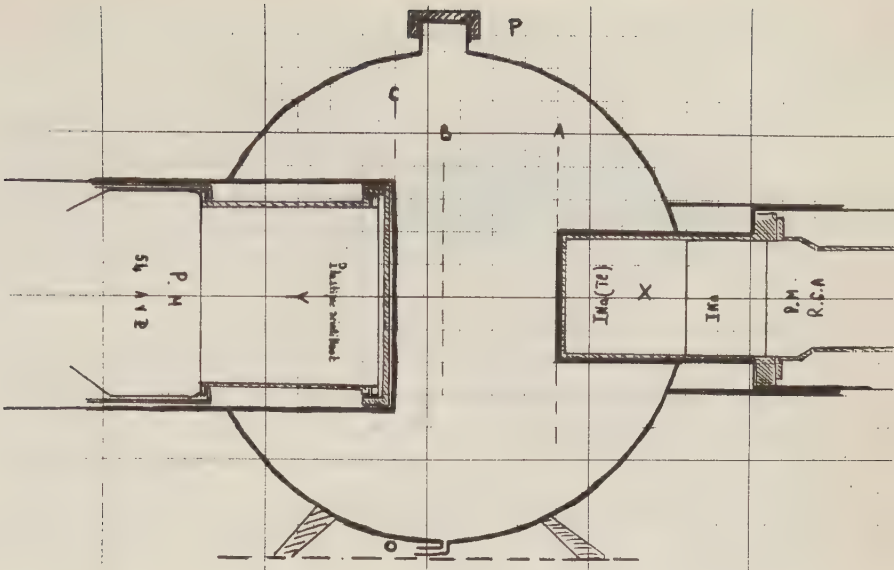


FIGURE 48 (échelle : ½)

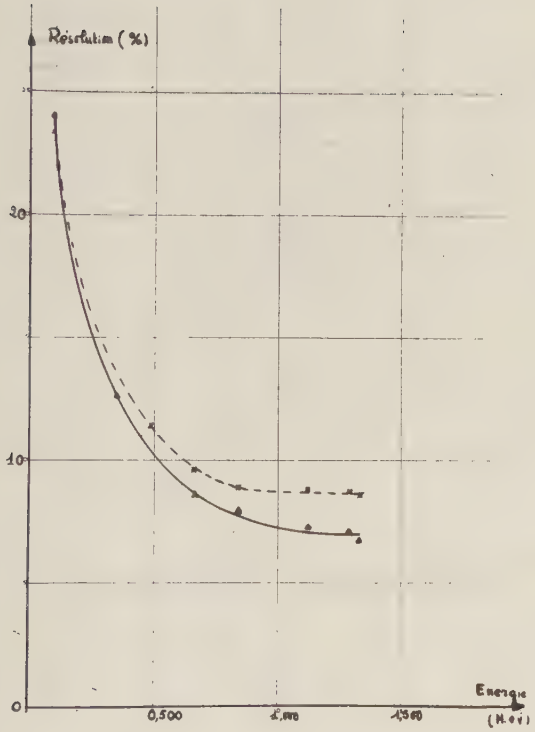


FIGURE N°7

RESOLUTION DU DETECTEUR EN ENERGIE

Comparaison de la résolution en énergie de 2 détecteurs à scintillation

- - - - détecteur muni d'un cristal INa(Tl) diamètre : 37,5 mm
hauteur : 75 mm

——— détecteur muni d'un cristal INa(Tl) diamètre : 75 mm
hauteur : 75 mm

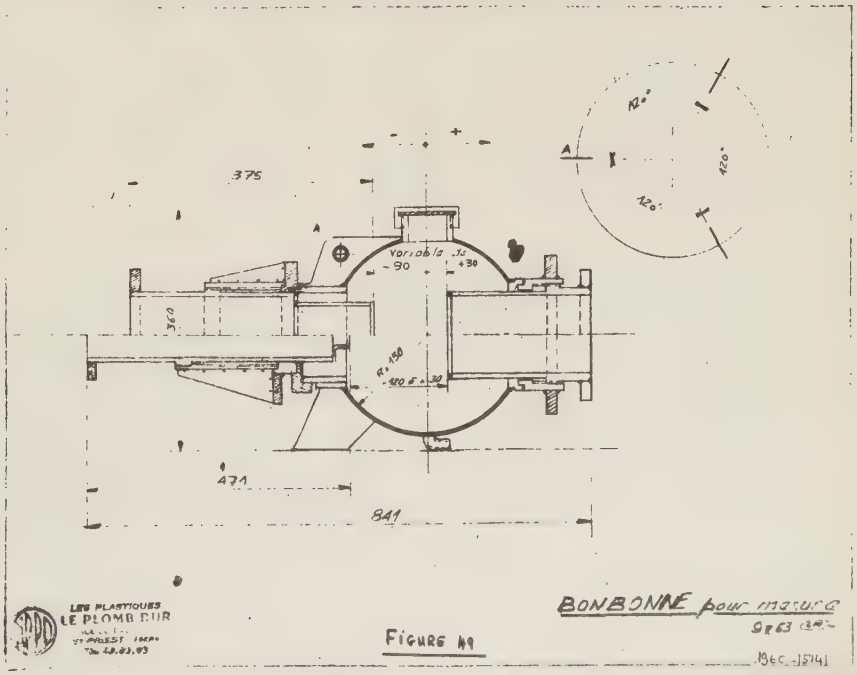


FIGURE N°9

Comme on peut le voir, ils sont bien meilleurs surtout pour des énergies égales ou supérieures à 0,500 MeV. Ceci permet de prévoir une bonne séparation des raies d'absorption totale, même lorsque celles-ci seront très voisines.

2.2. La nouvelle bonbonne, sphérique (diamètre = 300 mm) fabriquée en chlorure de polyvinyle par les Etablissements "Les Plastiques et le Plomb dur" de LYON a une capacité comprise entre 10 et 11 litres. (cf. FIGURES 48 et 49)

Elle possède à sa partie supérieure une ouverture de remplissage P, à sa partie inférieure un orifice d'évacuation O.

Les logements destinés à recevoir les sondes sont constitués par des cylindres dont les axes alignés coïncident avec un diamètre horizontal de la bonbonne. Grâce à un système de filetage, ils peuvent pénétrer plus ou moins profondément à l'intérieur de celle-ci. C'est ainsi qu'il est possible de déplacer la sonde munie du cristal d'INa(Tl) X de A (scintillateur à la périphérie de la bonbonne) jusqu'en C (le centre du cristal coïncide sensiblement avec celui de la bonbonne).

Le déplacement du détecteur anti-Compton Y est moins important puisqu'il s'effectue de C jusqu'en B (centre du récipient).

Signalons enfin :

- qu'un adaptateur permet de remplacer X par une autre sonde munie d'un cristal d'INa(Tl) de dimensions différentes

- que l'étanchéité de la bonbonne est assurée par des joints thoriques situés entre ses parties fixes et mobiles.

Ce dispositif a été conçu dans le but de déterminer la position dans laquelle les 2 détecteurs remplissent au mieux leur fonction, c'est à dire efficacité de comptage respective maximum, bonne résolution de l'ensemble, parfait ajustement des distributions Compton.

2.2.1. Pour cela, dans une première expérience effectuée sur 10 litres de solution renfermant une activité connue en ^{137}Cs, nous déplaçons progressivement X centimètre par centimètre de A à C, Y étant situé constamment en C. Pour chaque position de X, nous effectuons une mesure en un temps fixe. Sur les spectres obtenus, on détermine le nombre d'impulsions dans la raie d'absorption totale et la résolution de l'ensemble de comptage.

Les résultats du TABLEAU XII permettent certaines conclusions :

2.2.1.1. La hauteur de la raie d'absorption totale augmente au fur et à mesure que l'on enfonce plus profondément le cristal d'INa(Tl). L'efficacité de détection croit donc progressivement jusqu'à ce que le détecteur atteigne le centre du récipient. Elle se maintient alors à peu près constante.

2.2.1.2. Tous les spectres sont identiques. Comparés à ceux que donne la même sonde pour une source mince ils sont légèrement déformés : la surface de la distribution Compton augmente au dépens de celle de la raie d'absorption totale. Ce phénomène provient, nous l'avons vu, de ce que certains photons γ perdent une partie de leur énergie au sein de la source, avant de parvenir au détecteur.

Notons cependant que son importance reste la même quelque soit la position de la sonde. C'est pourquoi nous choisissons en définitive celle pour laquelle l'efficacité de détection est la meilleure.

2.2.2. La deuxième expérience réalisée avec la même solution radioactive a été effectuée avec la sonde anti-Compton Y pour rechercher son meilleur emplacement. X étant situé en B, on fait une mesure avec Y, lorsque celle-ci est en C (plastique scintillant complètement immergé dans l'eau ; photomultiplicateur tangent à la circonférence) puis en B (les logements des deux détecteurs se touchent alors).

On obtient les mêmes résultats dans les 2 positions : puisqu'aucune n'est privilégiée, le choix ne pouvait qu'être arbitraire. Nous avons opté pour C : de cette façon, le volume utile du récipient est le plus grand possible.

2.2.3. Il nous reste à vérifier si l'ajustement que nous avions réalisé précédemment sur les distributions Compton fournies par les 2 sondes est conservé pour ce nouvel ensemble de comptage.

Nous avons pu constater, par une série d'expériences, réalisées sur deux sources de photons γ (^{137}Cs, ^{60}Co) que les pentes des distributions Compton correspondaient parfaitement. Il n'y a donc pas lieu de modifier les tensions appliquées aux deux sondes. Par contre, les durées des mesures établies précédemment ne sont plus valables. En effet, dans ce cas, l'efficacité de détection au niveau des distributions Compton est la même pour les

T A B L E A U XII

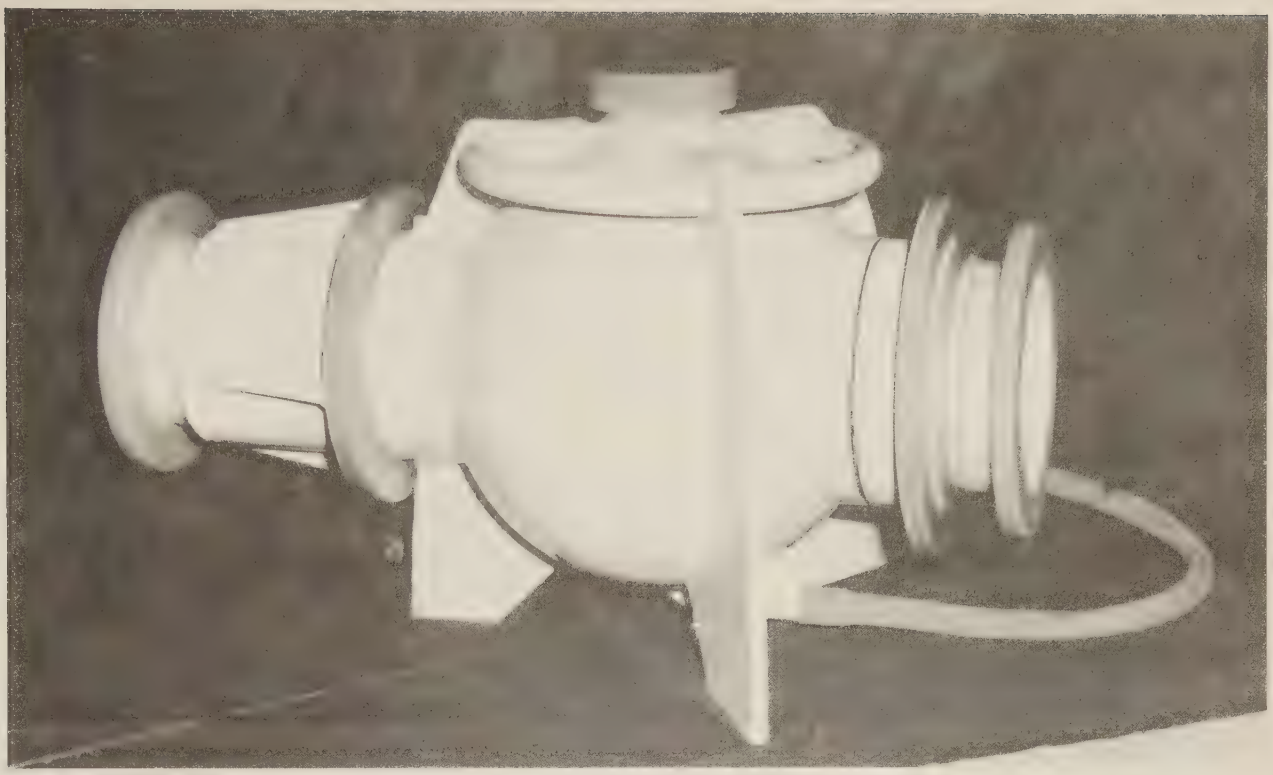
Etude de l'efficacité de détection de l'ensemble de comptage
en fonction de la position du détecteur à INa(Tl) dans le récipient sphérique

Conditions expérimentales :

Solution étudiée - volume : 10 litres
- élément radioactif : ^{137}Cs : 4 µc dans la solution

Détecteur à scintillateur plastique placé dans son logement situé en C

Expériences	Position détecteur INa(Tl)	Temps comptage T (secondes)	Impulsions comptées dans raie d'absorption totale pour T
n° 1	en A	49,2 × 4	11 035
2	A + 2 cm	"	12 664
3	A + 4 cm	"	14 111
4	A + 6 cm	"	14 604
5	A + 8 cm	"	15 592
6	A + 10 cm	"	17 093
7	en B (A + 12 cm)	"	16 806
8	A + 14 cm	"	16 387
9	en C (A + 15 cm)	"	16 339



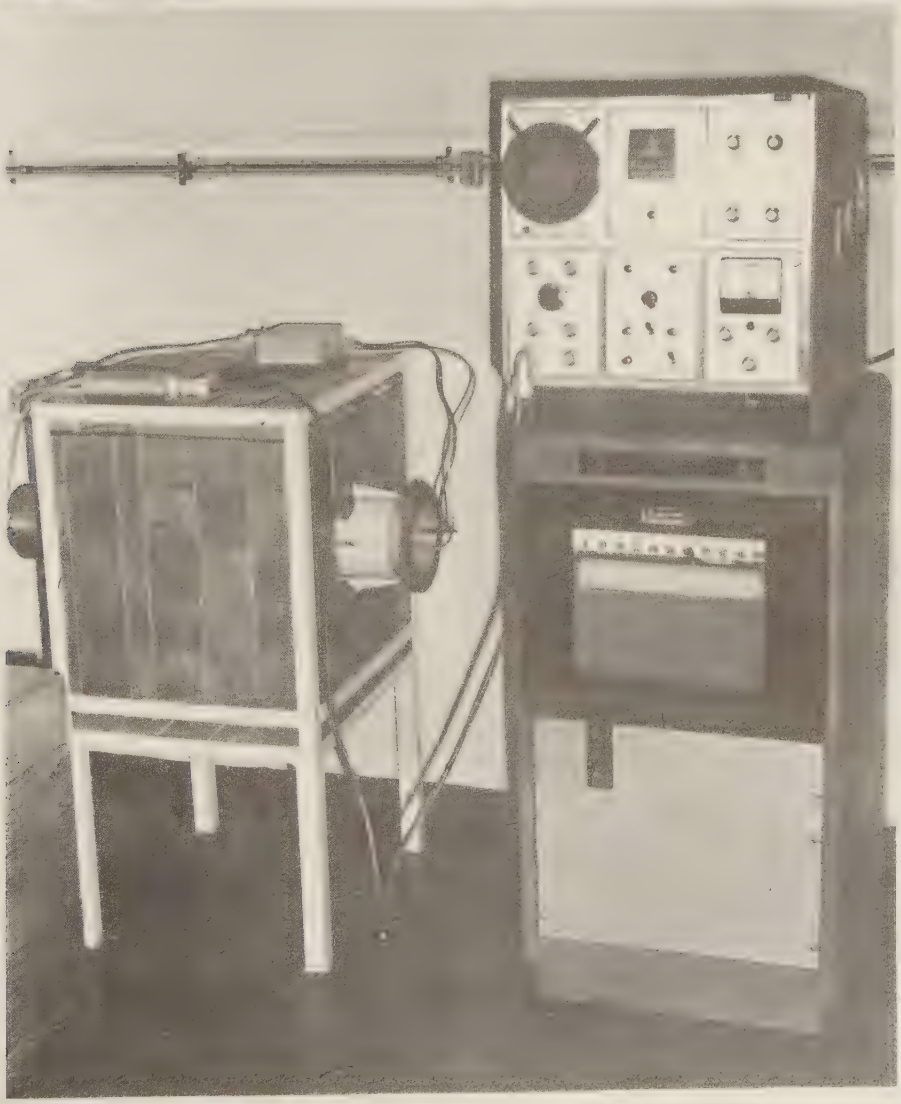


FIGURE 5

2 sondes, dans les positions choisies. Il suffit donc d'effectuer les comptages en des temps égaux. Ce résultat est intéressant. Les mesures se font plus facilement et plus simplement : on évite tout calcul préalable du temps de comptage pour chaque sonde, ce qui supprime les erreurs toujours possibles dans la détermination de l'activité d'une source comme de celle du bruit de fond.

D'autre part, si l'on veut prévoir le montage sur le trajet des impulsions d'un dispositif permettant la mise en rapport, à intervalles de temps réguliers, de l'une ou l'autre des 2 sondes avec le spectromètre, celui-ci sera beaucoup plus simple à réaliser si les durées des mesures sont les mêmes.

2.2.4. Pour complèter cet ensemble de comptage nous avons construit une chambre blindée dont la forme et les dimensions ont été choisies en fonction du nouveau récipient employé. Voici les caractéristiques (cf. FIGURE 50).

2.2.4.1. C'est un cube de 50 cm environ d'arêtes intérieures. Ses dimensions sont conditionnées par le fait que nous avons voulu placer les parois de la chambre à au moins 5 cm de la bonbonne.

2.2.4.2. Ses 6 faces sont constituées par l'assemblage de briques de plomb carrées (10 × 10 cm) à chevrons et de 5 cm d'épaisseur. Sur deux faces, il existe une ouverture pour le passage des logements des sondes.

2.2.4.3. Sur la face supérieure une dalle mobile de Plomb (15 × 15 cm) située au dessus de l'orifice de la bonbonne permet le remplissage de celle-ci.

2.2.4.4. Cette chambre repose sur un support métallique de 40 cm de haut. On peut ainsi après chaque mesure évacuer la solution, grâce à un tuyau flexible fixé sur 0, dans un récipient plastique de 10 litres posé sur le sol.

2.2.4.5. Enfin, il n'a pas été jugé nécessaire de tapisser les faces intérieures de ce blindage par des feuilles de Cadmium et de Cuivre.

En conclusion, notre ensemble de comptage définitif comprend : FIGURE 50

- 2 sondes : l'une à cristal d'INa(Tl) de 75 mm

de diamètre et 75 mm de hauteur.

l'autre à plastique scintillant (110 × 110 mm)

- un récipient sphérique dont la capacité n'excède pas 10 litres lorsque les deux sondes occupent les positions choisies.

- une chambre blindée pour la protection de l'ensemble.

- un chassis d'aiguillage à deux voies relie le spectromètre aux deux sondes. Celles-ci sont alimentées constamment en tension stabilisée mais lors d'un comptage seules les impulsions provenant de l'une d'entre elles parviennent au spectromètre.

La mise en oeuvre d'une mesure de l'activité d'un prélèvement d'eau se schématise ainsi :

1) après avoir rempli la bonbonne d'eau distillée, on place les deux sondes dans leur logement respectif. On effectue alors en soustraction l'enregistrement du bruit de fond donné par la sonde à INa(Tl) en un temps déterminé à l'avance.

2) on évacue l'eau que l'on remplace par la solution active. On fait un comptage avec la sonde à INa(Tl) en addition, dans le même temps T.

3) on fait alors une mesure, en soustraction, pendant le même temps T avec la sonde à plastique scintillant.

4) la bonbonne est vidée puis décontaminée jusqu'à ce que le mouvement propre mesuré avec la sonde à INa(Tl) soit revenu à sa valeur normale. Elle est alors rincée à l'eau ordinaire puis à l'eau distillée. C'est justement sur cette eau que l'on termine la mesure en effectuant un comptage, en addition, du mouvement propre donné par la sonde à plastique scintillant pendant le temps T.

Ces opérations conduisent à l'obtention d'un spectre γ débarassé de toutes les impulsions dûes à la fois aux distributions Compton et au mouvement propre.

CHAPITRE VII

Etude des caractéristiques de l'ensemble de mesure définitif.

Les expériences précédentes nous ont conduit à adopter un ensemble de mesure aux qualités bien définies. Il nous reste à voir maintenant si celui-ci répond au but que nous nous sommes fixé.

L'étude du mouvement propre des deux détecteurs, l'analyse des raies d'absorption totale, en particulier de leur largeur à mi-hauteur, dans les spectres γ débarassés de leur distribution Compton permettront de définir le nombre d'impulsions n qu'il faut compter dans une raie d'énergie déterminée pour réaliser une mesure valable (erreur < 20 %). Il suffit alors de connaitre l'efficacité de détection pour prévoir à partir de n l'activité minimale, exprimée en désintégrations ou en nombre de photons γ émis par unité de temps, que l'on puisse apprécier sur les sources de rayonnements, en l'occurence les prélèvements d'eau.

Nous réalisons donc les mesures avec les deux détecteurs en les plaçant dans leur logement respectif de la bonbonne. Celle-ci enfermée dans la chambre blindée est remplie :

- tout d'abord d'eau distillée exempte de produits radioactifs (étude du bruit de fond)

- puis successivement de différentes solutions d'activité connue en un radioélément déterminé.

Ces expériences sont effectuées dans les conditions que nous voulons adopter dans le cas des eaux :

- nous avons fixé une durée de comptage relativement courte (2I0 minutes) car nous pensons que l'in-

térêt de cette méthode dépend essentiellement de sa rapidité d'exécution et de la facilité avec laquelle on pourra la mettre en application dans le cas d'analyse en série.

- en jouant sur le gain de l'amplificateur linéaire du spectromètre nous avons délibéremment choisi de n'enregistrer que les impulsions qui correspondent à des énergies comprises entre 0,080 et 1,650 MeV. C'est à l'intérieur de ces limites que se situent les différents photons γ émis par les radioéléments que nous risquons de rencontrer dans les eaux.

1. Etude du mouvement propre

Si l'on se reporte à la FIGURE 51 dans laquelle nous avons consigné les résultats obtenus pour les deux détecteurs, on peut faire un certain nombre de constatations.

1.1. Détecteur à cristal INa(Tl) I

Le nombre d'impulsions assez important dans les tous premiers canaux diminue d'abord rapidement, plus lentement ensuite au fur et à mesure que l'énergie augmente. Sa valeur exprimée en impulsions par minute, passe de 119 pour une énergie de 0,100 MeV à 70 (0,140 MeV) puis à 17 (0,500 MeV),enfin à 1,50 pour 1,680 MeV.

Le spectre ne présente aucun accident notoire à l'exception d'une raie bien individualisée qui correspond à l'énergie des photons émis par ^{40}K. Ceci est dû malgré la pureté du cristal employé, au potassium que celui-ci renferme.

Si l'on compare maintenant ce mouvement propre à celui que nous avions obtenu avec la petite sonde (cristal INa(Tl), diamètre = 3,75 cm, hauteur = 2,5 cm) employée précédemment on remarque qu'il lui est bien supérieur : d'un facteur 16-17 aux énergies 0,500 et 1,000 MeV, d'un facteur 20 pour 1,440 MeV. Cette augmentation ne provient pas d'un manque de protection de la sonde contre les rayonnements parasites (l'épaisseur du blindage est identique dans les deux cas) mais plutôt des dimensions du cristal (7,5 × 7,5 cm) dont le volume est 12 fois plus grand que dans le cas précédent (330 cm^3 au lieu de 27,5 cm^3). On ne peut donc envisager de réduire ce bruit de fond dont il faudra tenir compte dans le calcul de l'activité minimale.

1.2. Détecteur à scintillateur plastique II

La courbe, comparable à la précédente, se situe

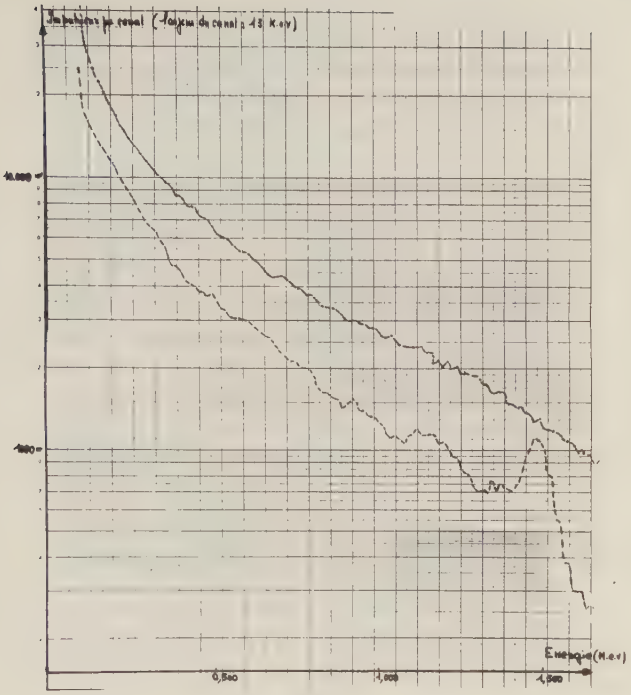


FIGURE 51

ETUDE DU MOUVEMENT PROPRE DES DEUX DETECTEURS UTILISES

_._._ détecteur à scintillateur plastique
_ _ _ _ détecteur à cristal INa(Tl)
(Durée des mesures : 210 minutes)

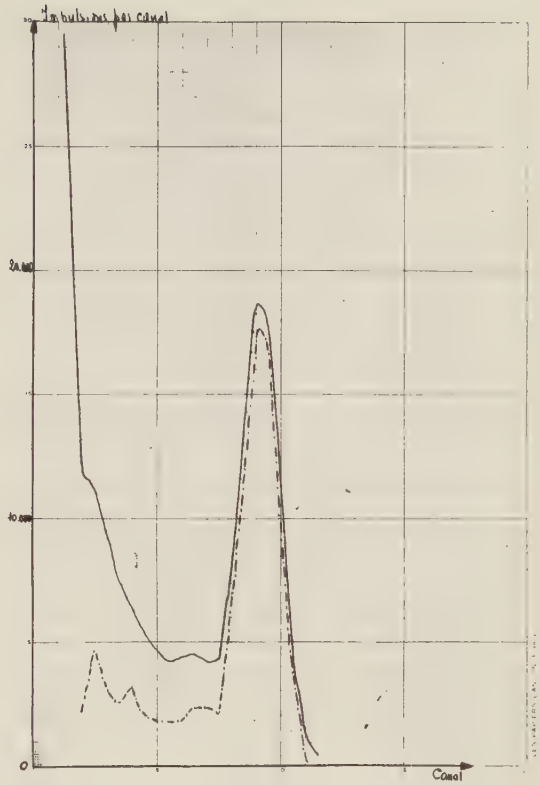


FIGURE 52

$^{51}_{Cr}$

——— spectre γ obtenu avec le détecteur à cristal INa(Tl) de 75 x 75 mm
_._._ spectre γ obtenu après déduction de la distribution Compton.

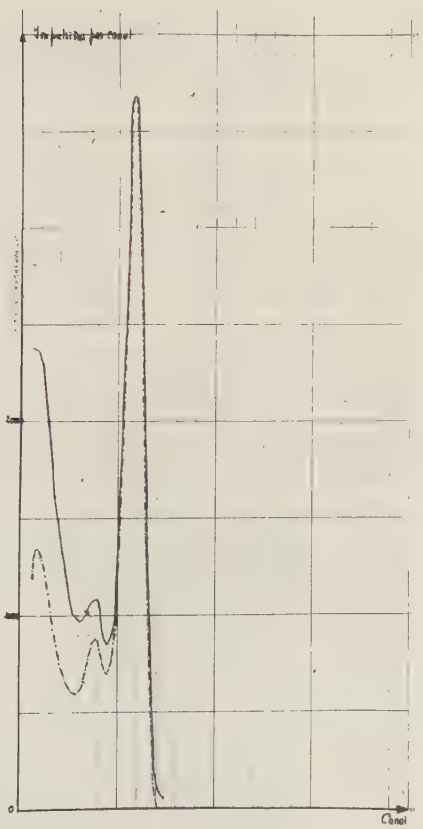


FIGURE 53

$^{131}_{I}$

——— spectre γ obtenu avec le détecteur à cristal INa(Tl) de 75 x 75 mm
_._._ spectre γ obtenu après déduction des distributions Compton.

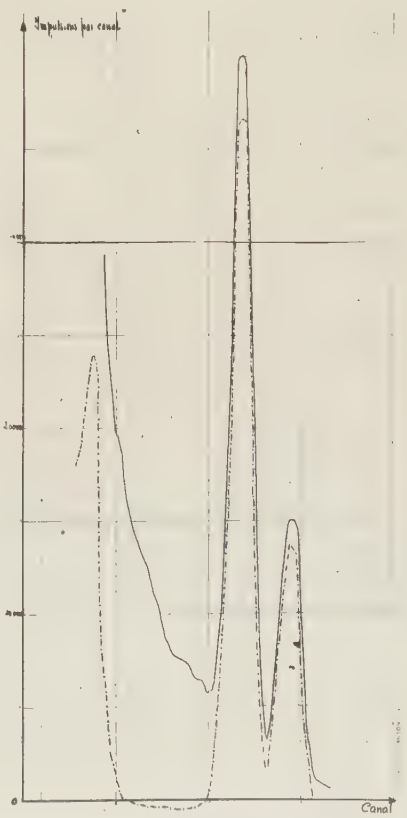


FIGURE 54

$^{106}_{Ru} - ^{106}_{Rh}$

——— spectre γ obtenu avec le détecteur à cristal INa(Tl) de 75 x 75 mm
_ _ _ _ spectre γ obtenu après déduction des distributions Compton

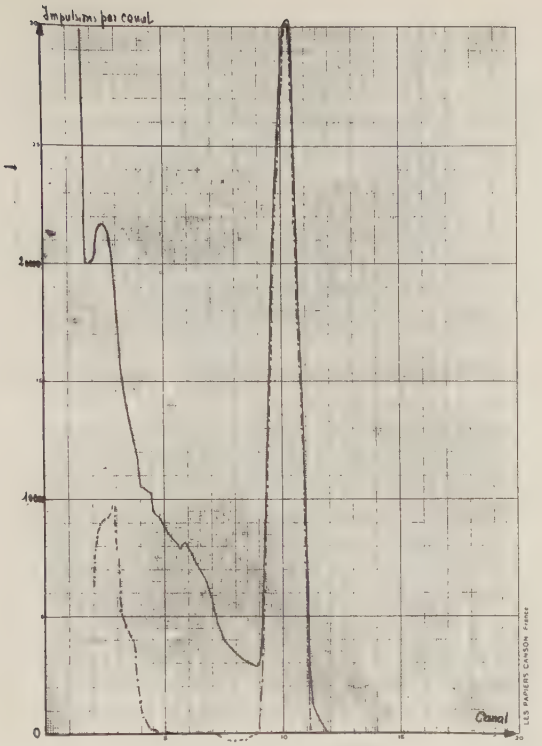


FIGURE 55

^{137}Cs

——— spectre γ obtenu avec le détecteur à cristal INa(Tl) de 75 x 75 mm
—·—·— spectre γ obtenu après déduction de la distribution Compton

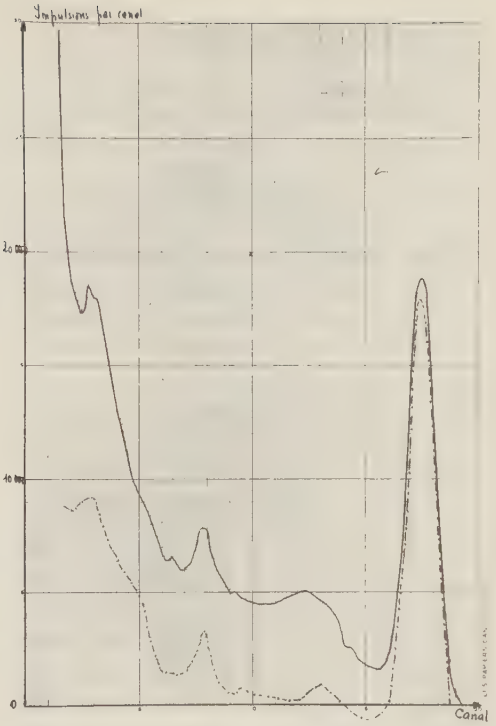


FIGURE 57

^{65}Zn

——— spectre γ obtenu avec le détecteur à cristal INa(Tl) de 75 x 75 mm
—·—·— spectre γ obtenu après déduction de la distribution Compton.

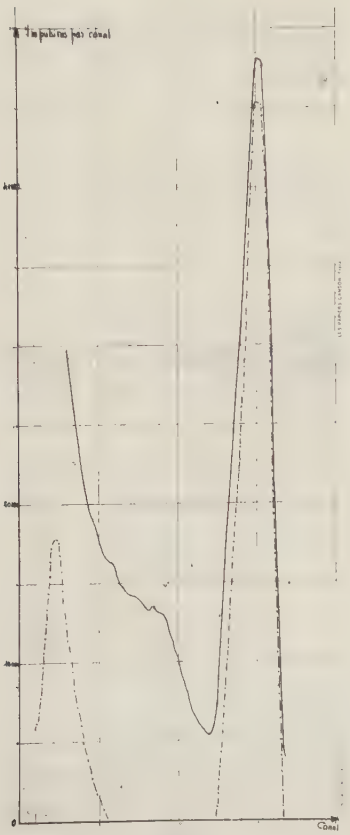


FIGURE 56

$^{95}Zr - ^{95}Nb$

——— spectre γ obtenu avec le détecteur à cristal INa(Tl) de 75 x 75 mm
—·—·— spectre γ obtenu après déduction de la distribution Compton

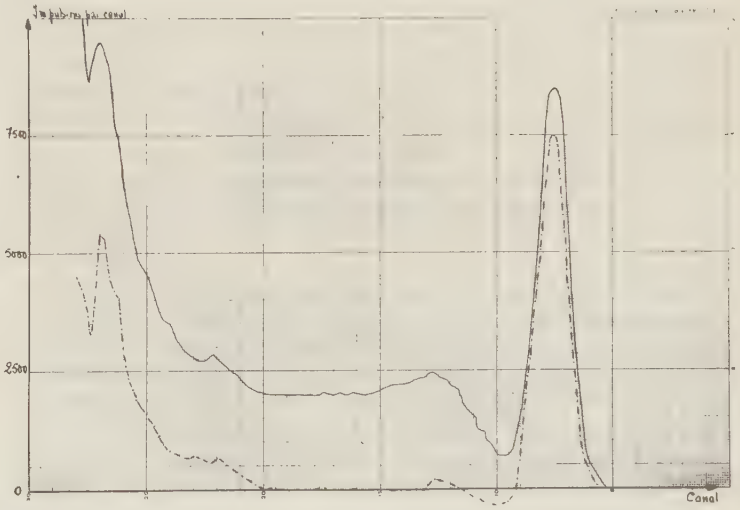


FIGURE 58

^{40}K

——— spectre γ obtenu avec le détecteur à cristal INa(Tl) de 75 x 75 mm
—·—·— spectre γ obtenu après déduction de la distribution Compton.

néanmoins au dessus d'elle et ne présente pas d'accident pour une énergie de 1,400-1,500 MeV.

Elle ne lui est pas exactement parallèle puisque le rapport du nombre d'impulsions comptées par II sur le nombre d'impulsions comptées par I varie de 1,50 pour 0,250 MeV à 2,10 pour 1,000 MeV en passant par les valeurs de 1,66 (0,500 MeV) et 1,90 (0,750 MeV).

2. Etude des spectres γ obtenus sur différentes sources de radioéléments.

2.1. Celle-ci est réalisée sur un certain nombre de sources de radioéléments d'activité connue avec précision. Sur chacune de celles-ci (par ordre croissant d'énergie : ^{51}Cr, ^{131}I, ^{106}Ru - ^{106}Rh, ^{137}Cs, ^{95}Zr - ^{95}Nb, ^{65}Zn, ^{40}K) nous avons enregistré successivement le spectre donné par le détecteur à cristal INa(Tl) (I) puis celui du détecteur à scintillateur plastique (II). Ce sont ces spectres, après déduction du mouvement propre, que nous donnons dans les FIGURES 52, 53, 54, 55, 56, 57, 58. Nous mentionnons de plus les distributions provenant de la soustraction I - II.

2.1.1. Les spectres obtenus avec le détecteur à cristal INa(Tl) présentent deux parties très distinctes :

- la première aux formes et limites bien définies constituée par la raie d'absorption totale. Dans le cas de ^{131}I, ^{106}Ru - ^{106}Rh, il existe deux raies.

- l'autre située du côté des basses énergies, composée par la distribution Compton à laquelle s'associe la raie de rétrodiffusion. Sa surface varie suivant le radioélément étudié mais est toujours beaucoup plus importante que dans le cas de mesures effectuées sur des sources minces. Ceci provient, nous l'avons vu, de ce que certains photons γ émis par la source ne parviennent au détecteur qu'après avoir perdu une partie de leur énergie au sein de l'échantillon.

On comprend mieux à la vue de ces distributions la nécessité d'enlever de celles-ci toutes les impulsions parasites qui gènent considérablement leur interprétation même lorsque l'on a affaire à un mélange assez simple de radioéléments.

2.1.2. C'est ce que l'on réalise en soustrayant II de I. En effet, les spectres obtenus avec le détecteur à scintillateur plastique correspondent assez bien aux distributions Compton fournies par le détecteur à cristal INa(Tl) : leur ajustement en comptage et en

énergie reste valable : les fronts Compton ont des pentes comparables.

Par soustraction on enlève donc la plus grande partie des impulsions appartenant aux distributions Compton sans trop lèser les raies d'absorption totale. Pour ^{137}Cs, par exemple, nous avons calculé que cette opération ne diminue la surface de la raie que de 10 %.

Notons enfin que la soustraction n'affecte pas les raies de rétrodiffusion qui ont, avec le dispositif de comptage utilisé, une importance assez grande. Ce phénomène constitue un facteur génant dans l'étude des spectres complexes puisque ces raies peuvent se confondre avec des raies d'absorption totale.

Nous verrons dans la suite de cet exposé s'il est nécessaire d'envisager une modification à notre ensemble de mesure pour remèdier à cet inconvénient.

2.2. C'est sur ces spectres γ débarassés des impulsions parasites dûes au mouvement propre et aux distributions Compton que nous déterminons les deux grandeurs caractéristiques de notre ensemble de comptage, à savoir sa résolution et son efficacité de détection des photons γ.

2.2.1. Résolution de l'ensemble de comptage en énergie.

Les valeurs obtenues sont consignées dans le TABLEAU XIII et comparées dans la FIGURE 59 à celles que nous avions trouvées lors d'une expérience similaire réalisée sur des sources minces de radioéléments.

Les deux courbes tracées en reliant les différents points expérimentaux sont sensiblement parallèles mais l'on note que celle qui correspond à l'expérience présente se situe au dessus de l'autre.

Ceci signifie que la résolution devient moins bonne lorsque l'on effectue les mesures sur la bonbonne et que nous devons en tenir compte dans l'étude des spectres.

Signalons enfin que la valeur de la résolution déterminée sur la raie d'absorption totale du spectre donné par ^{95}Zr - ^{95}Nb ne se situe pas sur la courbe car trop élevée (12,2 %). Ce résultat provient de ce que ces éléments émettent en se désintégrant trois groupes de photons γ d'énergie légèrement différente (0,722 - 0,754 0,768) ce qui provoque l'élargissement de la raie.

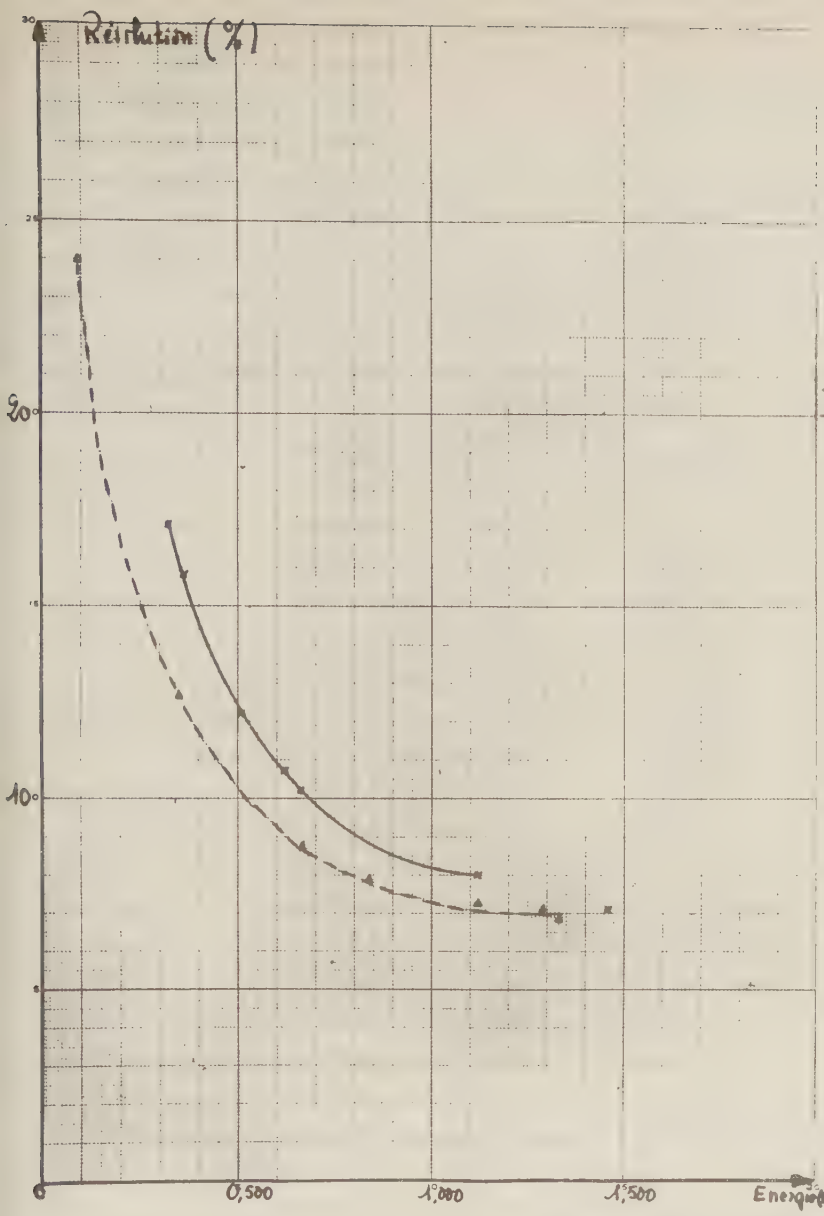


FIGURE 59

RESOLUTION DU DETECTEUR EN ENERGIE

– – – résultats obtenus sur les sources minces de radioéléments.

– x – x – résultats obtenus sur la source de 10 litres contenue dans le récipient sphérique.

FIGURE 60

EFFICACITE DE DETECTION DES PHOTONS γ EN FONCTION DE LEUR ENERGIE

– ▲ – ▲ –: Résultats obtenus avec le détecteur à cristal INa(Tl) 75 x 75 mm sur une source de 10 litres

– x – x –: Résultats obtenus avec le détecteur à cristal INa(Tl) diamètre : 37,5 ; h : 25 mm sur une source de 12,775 litres.

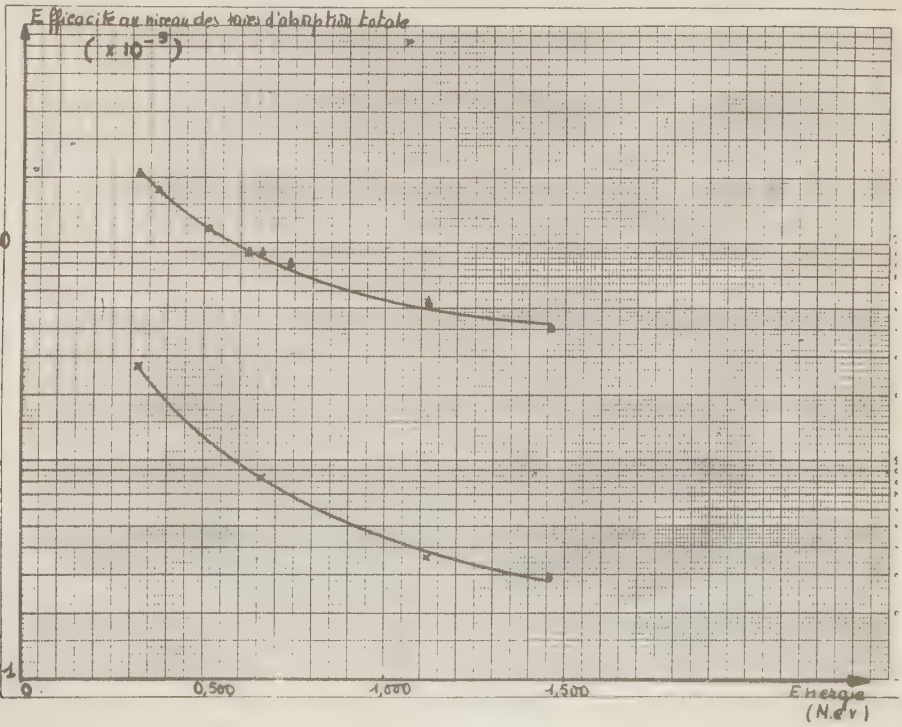


TABLEAU XIII

Résolution du compteur à scintillation à cristal INa(Tl) 7,5 × 7,5 cm

Mesures effectuées sur des solutions de radioéléments contenues dans un récipient sphérique de 10 litres.
Spectres γ débarassés de leur distribution Compton

Elément	Energie (MeV)	Résolution (%)
^{51}Cr	0,323	17,10
^{131}I	0,364	15,80
^{106}Ru	0,511	12,20
	0,620	10,70
^{137}Cs	0,660	10,20
^{65}Zn	1,12	8,07
^{40}K	1,44	7,14

2.2.2. Efficacité de détection des photons au niveau des raies d'absorption totale.

Celle-ci se détermine suivant le procédé que nous avons décrit lors de l'étude de l'efficacité du détecteur monté avec le petit cristal INa(Tl). Il suffit pour la calculer de connaitre le nombre d'impulsions présentes dans la raie d'absorption totale.

Ce procédé était néanmoins limité à l'étude des spectres ne contenant qu'une seule raie. Dans le cas présent, il s'applique à tous les spectres, quels que soient le nombre et la position des raies d'absorption totale puisqu'aucune impulsion parasite provenant des distributions Compton ne perturbe leur surface. C'est ainsi que nous avons pu déterminer l'efficacité de comptage pour une énergie de 0,364 MeV sur la raie d'^{131}I et pour des énergies de 0,511 - 0,620 MeV sur les deux raies voisines de ^{106}Ru - ^{106}Rh.

Nous donnons les résultats dans le TABLEAU XIV
Dans la FIGURE 60 nous avons construit la courbe représentative de l'efficacité de détection en fonction de l'énergie. En la comparant à celle que nous avions obtenue avec le détecteur à petit cristal INa(Tl) on constate que

l'efficacité est bien supérieure dans ce cas puisqu'elle passe de 2,70 à $20,80.10^{-3}$ pour une énergie de 0,323 MeV, de 0,82 à 9.10^{-3} pour une énergie de 0,660 MeV et de 0,29 à 4.10^{-3} pour 1,460 MeV.

De plus, les deux courbes n'ont pas exactement la même forme. Celle que l'on trace à partir des points expérimentaux obtenus avec le gros cristal est plus plate : l'efficacité de détection au niveau des raies diminue beaucoup plus lentement lorsque l'énergie des photons γ comptés augmente. Ceci provient de ce que les photons assez énergiques qui n'étaient pas arrêtés par un scintillateur peu épais, cèdent cette fois, dans une grande proportion, leur énergie au cristal.

3. Détermination de l'activité γ minimale que l'on peut mesurer avec précision sur les échantillons d'eau.

Par la connaissance du bruit de fond, de la résolution et de l'efficacité de détection de l'ensemble de comptage, nous sommes en possession de toutes les données qui permettent cette détermination.

Le bruit de fond au niveau d'une raie d'absorption totale ainsi que la largeur à mi-hauteur de celle-ci conditionnent le nombre n d'impulsions par minute qu'il faut compter dans cette raie pendant un temps donné pour une mesure précise. A partir de n il est très facile de calculer l'activité minimum détectable sur un échantillon d'eau si l'on connait l'efficacité de comptage de notre appareil de mesure.

3.1. Nous avons établi, lors de l'étude des spectres γ obtenus avec le détecteur muni d'un cristal INa(Tl) de 3,75 cm de diamètre et de 2,5 cm de hauteur que l'erreur faite sur le comptage de N impulsions nettes dans une raie d'énergie déterminée dépend essentiellement du mouvement propre B de l'ensemble de mesure au niveau de cette raie :

$$\sigma N = \sqrt{N + B + B}$$

Dans le cas de mesures de faibles activités on peut négliger N puisqu'il est bien inférieur à 2 B et l'on a en fin de compte

$$\sigma N = \sqrt{2B}$$

Si l'on veut que la mesure de N soit affectée d'une erreur $\leq$ 20 % et ceci dans 95 % des cas, il faut donc que

$$N \geq 5 \times 2 \sigma N$$

T A B L E A U XIV

Efficacité de comptage au niveau de la raie d'absorption totale après suppression de la distribution Compton du spectre γ.

Détecteur muni d'un cristal INa(Tl) de 7,5 × 7,5 cm

Eléments	Raie d'absorption totale étudiée (MeV)	T Durée de la mesure (minutes)	X Nombre de photons γ émis par la source pendant T	Y Nombre d'impulsions comptées dans la raie pendant T	$\varepsilon = \frac{Y}{X}$ Efficacité ($.10^{-3}$)
^{51}Cr	0,323	210	1 636 000	34 131	20,80
^{131}I	0,364	210	83 520 000	1 491 735	17,80
^{106}Ru - ^{106}Rh	0,511	210	14 946 000	173 047	11,50
	0,620	210	7 117 000	62 300	8,75
^{137}Cs	0,660	210	19 114 000	173 000	9,00
^{95}Zr - ^{95}Nb	0,722 0,754 0,768	210	35 550 000	272 585	7,94
^{65}Zn	1,120	210	14 732 000	180 137	5,40
^{40}K	1,440	210	14 240 000	57 482	4,00

C'est à dire $N \geq 10\sqrt{2B}$

Ce calcul n'a de valeur que si aux impulsions appartenant effectivement à cette raie c'est à dire provenant de l'absorption totale dans le cristal de photons γ d'énergie E, ne s'ajoutent que celles qui proviennent du mouvement propre. Ceci signifie que cette détermination ne s'applique qu'à l'étude des spectres simples constitués d'une seule raie d'absorption totale.

Dans le cas présent, le problème est plus complexe et l'on doit envisager différentes possibilités.

3.1.1. Etude d'une raie d'absorption totale non perturbée initialement par une distribution parasite (Compton ou autre)

Ce cas ne diffère que peu du précédent. Il se présente :

- soit lorsque l'on a affaire à une source n'émettant qu'un groupe de photons γ.

- soit dans le cas de sources polyénergétiques, lorsque l'on étudie le rayonnement γ le plus énergique.

Le spectre obtenu avec notre ensemble de comptage sur de telles sources se compose d'une ou de plusieurs raies d'absorption totale. Pour l'obtenir ainsi, il a fallu :

3.1.1.1. Enregistrer pendant un temps t la distribution donnée par la sonde à cristal INa (Tl) (I) lorsque celle-ci est exposée à la source de rayonnements. Soit S le nombre d'impulsions comptées pendant t dans les canaux X où se loge la raie.

3.1.1.2. Soustraire les impulsions B dûes au mouvement propre de la sonde I pour le temps t au niveau de la raie.

3.1.1.3. Supprimer la distribution Compton c'est à dire soustraire toutes les impulsions qui en sont responsables. Cette opération se réalise en effectuant un comptage pendant le temps t avec la sonde à scintillateur plastique II.

Si l'on a obtenu au préalable un parfait ajustement des distributions Compton données par I et II on pourrait admettre que l'on ne supprime aucune impulsion appartenant à la raie d'absorption totale.

Il faut néanmoins considérer que II possède un mouvement propre. Certaines impulsions de celui-ci, soit

B' pendant t, se logent dans les canaux X où se situe la raie. Elles ont été enlevées du spectre lors de la soustraction Compton.

3.1.1.4. Il faut donc les rajouter en enregistrant en addition le mouvement propre de II pendant t.

Le nombre d'impulsions nettes N obtenues dans la raie pendant t après ces quatre opérations est donc :

$$N = S - B - B' + B'$$

d'où l'erreur faite sur N

$$\sigma N = \sqrt{S + B + B' + B} = \sqrt{N + B + B + B' + B'}$$

si $n = N/t$

$$\sigma_n = \sqrt{\frac{n + 2b + 2b'}{t}}$$

Comme dans le cas précédent on peut négliger n devant 2b et 2b' et

$$\sigma_n = \sqrt{\frac{2b + 2b'}{t}}$$

Pour effectuer une mesure avec une erreur de comptage inférieure ou égale à 20 %, et ceci dans 95 % des cas, il faut donc que

$$n \geq 10 \sqrt{\frac{2b + 2b'}{t}}$$

n ne dépend donc que du mouvement propre des deux sondes et de la résolution de l'ensemble de comptage.

Nous avons déterminé sa valeur pour des raies d'énergie comprises entre 0,200 et 1,500 MeV (durée de mesure : 2IO minutes) (cf. FIGURE 61 et TABLEAU XV)

On constate que n diminue au fur et à mesure que l'énergie des photons γ étudiés augmente. Il reste néanmoins toujours bien supérieur à ce qu'il était lorsque nous opérions avec la sonde munie du petit cristal INa(Tl). Ceci provient de ce que dans son calcul, nous tenons compte cette fois des bruits de fond des deux détecteurs, qui sont tous deux plus importants que dans le cas précédent.

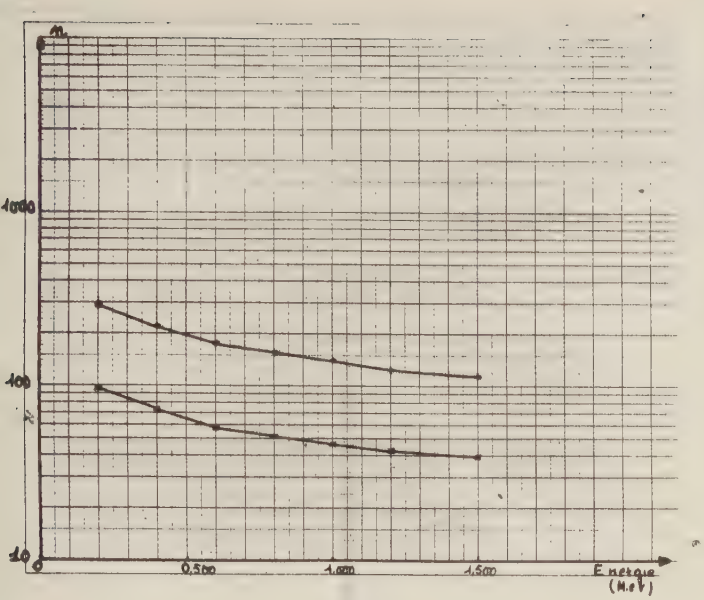


FIGURE 62

Etude du nombre d'impulsions n à compter par minute dans une raie d'absorption totale d'énergie déterminée pour que l'erreur affectant la mesure soit ≤ 20 %

$$+ - \blacklozenge - \blacksquare : \quad n = 5 \times 2\sqrt{\frac{2b + 2b' + 10(2b + 2b')}{t}}$$

$$\times - \times - \times : \quad n = 5 \times 2\sqrt{\frac{2b + 2b' + 100(2b + 2b')}{t}}$$

(t : durée de la mesure : 210 minutes)

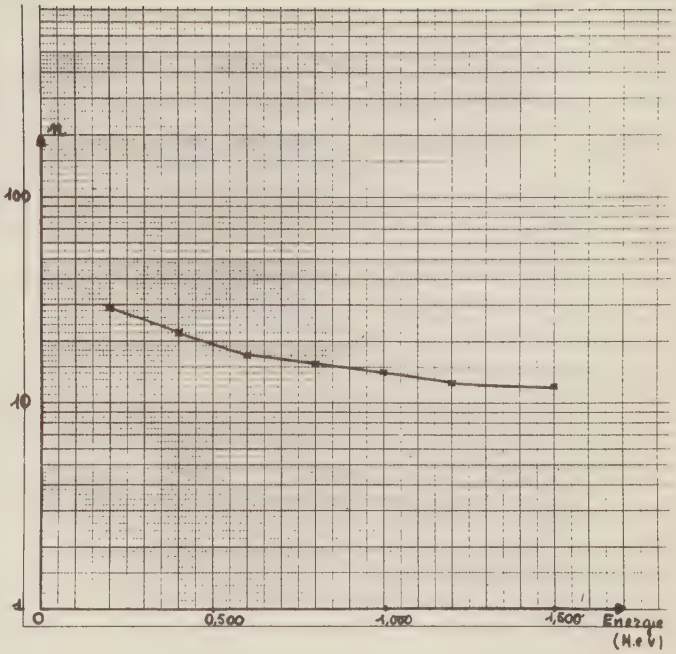


FIGURE 61

Etude du nombre d'impulsions n à compter par minute dans une raie d'absorption totale d'énergie déterminée pour que l'erreur affectant la mesure soit ≤ 20 %

$$n = 5 \times 2\sqrt{\frac{2b + 2b'}{t}}$$

(t = durée de la mesure : 210 minutes)

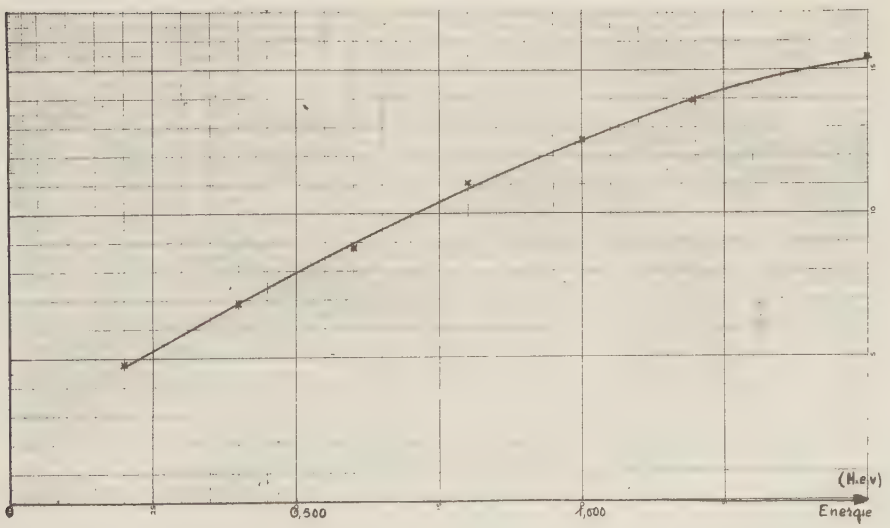


FIGURE 63

ACTIVITE MINIMALE DETECTABLE SUR UN PRELEVEMENT D'EAU RENFERMANT UN SEUL RADIOELEMENT

- Durée de la mesure : 210 minutes
- Activité γ exprimée en nombre n de photons émis par la source et par minute.

TABLEAU XV

Activité γ minimum détectable sur un prélèvement d'eau renfermant un seul radioélément

Durée de la mesure : 2I0 minutes

Activité γ exprimée en nombre de photons γ émis par la source et par minute

Energie de la raie (MeV)	n photons γ émis par la source (10 litres) (par minute)
0,200	960
0,400	1 370
0,600	1 760
0,800	2 210
1,000	2 510
1,200	2 780
1,500	3 060

3.1.2. Etude d'une raie d'absorption totale perturbée initialement par une distribution parasite.

Deux cas sont à envisager :

3.1.2.1. La source radioactive ne renferme qu'un radioélément mais celui-ci émet plusieurs groupes de photons γ d'énergie différente. Le spectre se compose donc d'un certain nombre de raies d'absorption totale parmi lesquelles on choisit, pour la détermination de l'efficacité de comptage, celle qui est la plus importante quelque soit sa position dans le spectre. Ce procédé est valable puisque l'on supprime à l'aide du détecteur à scintillateur plastique toutes les impulsions parasites, dûes aux distributions Compton, au niveau de cette raie.

^{131}I, par exemple, émet des photons γ d'énergie variée : 0,080 - 0,284 - 0,364 - 0,510 - 0,638 - 0,722 MeV. On a intérêt à ne pas étudier la raie de 0,722 MeV trop petite mais celle de 0,364 MeV dont la hauteur est bien supérieure à celle des autres.

Au niveau de celle-ci, on peut admettre qu'il n'y a pas à tenir compte, dans le calcul de l'erreur faite sur n, des impulsions appartenant aux distributions Compton de 0,510 - 0,630 - 0,722 MeV et supprimées par le détecteur à scintillateur plastique puisque leur nombre est très petit par rapport à n et surtout à b et b'. La formule établie plus haut s'applique donc et comme dans le cas précédent, n ne dépend que du mouvement propre des deux sondes, de la résolution de l'ensemble de comptage.

Là aussi, il est possible de connaitre à priori le nombre d'impulsions à compter par minute pour effectuer une mesure exacte. Il suffit de se reporter à la courbe précédente que l'on peut utiliser chaque fois que l'on a affaire à une source ne renfermant qu'un radioélément, quelque soit d'ailleurs le nombre et l'énergie des photons qu'il émet.

3.1.2.2. La source radioactive contient plusieurs radioéléments dont on ne connait pas la nature exacte et l'importance respective. C'est le cas que nous rencontrerons dans la mesure des eaux polluées par différents produits de fission.

Le spectre présente donc une certaine complexité et à l'exception de celle qui correspond aux photons γ les plus énergiques toutes les autres raies d'absorption totale sont perturbées par des distributions Compton parasites. On élimine ces distributions par un comptage effectué en soustraction avec le détecteur à scintillateur plastique. Cette opération est affectée d'une certaine erreur dont il faudra tenir compte dans le calcul de n. En effet, au niveau d'une raie d'énergie déterminée, le nombre n' d'impulsions/minute, dûes aux distributions parasites, toujours bien inférieur dans le cas précédent à n, b et b', peut prendre cette fois n'importe quelle valeur. Il dépend du spectre étudié et variera d'une expérience à l'autre. Il n'est donc pas possible de prévoir à l'avance lorsque l'on a affaire à un spectre complexe, le nombre n d'impulsions nettes à compter dans une raie pour effectuer une mesure valable puisque celui-ci dépend dans une large mesure de la nature et de l'importance des rayonnements γ qui composent la source - on le calculera pour chaque cas particulier à partir de la formule

$$n \geqslant 5 \times 2\sqrt{\frac{2b + 2b' + n'}{t}} \qquad (1)$$

En conclusion, les résultats obtenus dans la détermination de n pour une source ne renfermant qu'un

radioélément, bien que fournissant de précieux renseignements sur les possibilités de notre ensemble de comptage ne nous permettent pas de définir directement la limite de détection de la radioactivité des eaux puisque celles-ci sont généralement contaminées par plusieurs produits de fission.

On peut néanmoins avoir une idée relativement juste de cette limite de détection en étudiant la variation de n en fonction de n'. Pour cela nous avons calculé pour des raies d'énergie comprise entre 0,200 et 1,500 MeV les valeurs de n lorsque n' est 10 puis 100 fois supérieur à la somme de $2b + 2b'$.

Les résultats consignés dans la FIGURE 62 montrent qu'il faudra compter un nombre n d'impulsions 3 fois (pour $n' = 10\ (2b + 2b')$ et 10 fois (pour $n' = 100\ (2b+2b')$ supérieur à celui qui était nécessaire lorsque $n' = 0$. Nous verrons, dans le paragraphe suivant, si ces valeurs sont compatibles avec le but que nous poursuivons.

3.2. Activité minimum détectable sur un échantillon d'eau

Celle-ci se détermine facilement puisque l'on connait maintenant n et l'efficacité de détection ε de notre ensemble de comptage.

Il suffit, en effet, de faire le produit de n par l'inverse de ε pour connaitre l'activité (exprimée en nombre de photons γ émis par la source et par unité de temps) que doit posséder la source pour qu'elle soit détectable.

3.2.1. Dans le cas d'un échantillon d'eau ne renfermant qu'un radioélément

$$n = 5 \times 2 \sqrt{\frac{2b + 2b'}{t}}$$

et il suffit de se reporter à la FIGURE 60 pour connaitre l'efficacité de détection ε au niveau d'une raie d'énergie déterminée. Nous donnons dans le TABLEAU XV et la FIGURE 63 les valeurs de la plus petite activité que l'on puisse mesurer sur un prélèvement d'eau ne contenant qu'un radioélément.

D'après celles-ci, nous voyons qu'il est possible de mettre en évidence, (erreur $\lesssim$ 20 %) l'émission d'un très petit nombre de photons γ par la source. Celui-ci calculé pour une minute et un litre d'eau, est égal à

96 pour des photons d'énergie égale à 0,200 MeV
175 " " " " 0,600 MeV
307 " " " " 1,500 MeV

Si tous les radioéléments, chaque fois qu'ils se désintégrent, émettaient un photon γ, la plus petite activité mesurable sur les échantillons d'eau serait de l'ordre de

48 pC/litre pour 0,200 MeV
87 " " 0,600 MeV
150 " " 1,500 MeV

Ce phénomène n'est malheureusement pas général puisque parmi les principaux produits de fission qui nous intéressent, seuls ^{103}Ru et ^{95}Zr - ^{95}Nb sont dans ce cas. Pour tous les autres, le nombre de photons γ d'énergie déterminée émis par désintégration est inférieur à 1.

Il faut donc en tenir compte dans le calcul de l'activité minimale. C'est ce que nous avons fait pour ^{144}Ce - ^{144}Pr, ^{141}Ce, ^{131}I, ^{103}Ru, ^{106}Ru - ^{106}Rh, ^{137}Cs, ^{95}Zr - ^{95}Nb, ^{40}K. Cette liste n'est pas limitative et chaque fois que le besoin s'en fera sentir, on pourra appliquer ce calcul à n'importe quel autre radioélément. (cf. TABLEAU XVI)

Comme on peut le voir en étudiant les résultats, les concentrations que l'on apprécie dans l'eau avec notre ensemble de comptage sont très basses et toutes inférieures aux C.M.A.P. Ceci est important car nous atteignons le but que nous nous étions fixé, tout du moins dans le cas de prélèvements d'eau ne renfermant qu'un radioélément.

Notons cependant que le pouvoir de détection varie suivant les nuclides envisagés. Pour certains qui n'émettent que peu de photons en se désintégrant (^{144}Ce - ^{144}Pr, ^{106}Ru - ^{106}Rh, ^{40}K) l'activité minimum détectable est assez élevée.

3.2.2. Il n'est pas possible de déterminer avec précision la concentration minimum en un radioélément que doit posséder un échantillon d'eau qui renferme plusieurs nuclides puisque celle-ci dépend, nous l'avons vu, de leur nature et de leur importance respective.

On peut néanmoins déterminer l'activité minimum détectable A à partir des valeurs n calculées par la formule (1). Lorsque n' = 10 (2b + 2b'), A se trouve majorée d'un facteur 3. Pour n' = 100 (2b + 2b') elle est 10 fois supérieure à celle que l'on obtenait pour n' = 0. Notons que même dans ce cas, qui ne se présentera que très rarement, on détecte tous les radioéléments étudiés à des concentrations inférieures aux C.M.A.P.

T A B L E A U XVI

Activité minimum détectable A
sur un prélèvement d'eau renfermant un seul radioélément.

Durée de la mesure : 210 minutes
Activité exprimée en pC/litre.

Eléments	Raie d'absorption totale sur laquelle se fait l'étude (MeV)	Activité minimum détectable (pC/litre)	Concentration Maximale Admissible pour les Populations (pC/litre)
^{144}Ce - ^{144}Pr	0,134	738	20 000
^{141}Ce	0,145	62	90 000
^{131}I	0,364	8I	I 000
^{103}Ru	0,500	80	80 000
^{106}Ru - ^{106}Rh	0,620	1 840	I0 000
^{137}Cs	0,662	116	20 000
^{95}Zr - ^{95}Nb	0,720 0,754 0,764	104	^{95}Zr 60 000 ^{95}Nb I00 000
^{40}K	1,460	1 200	

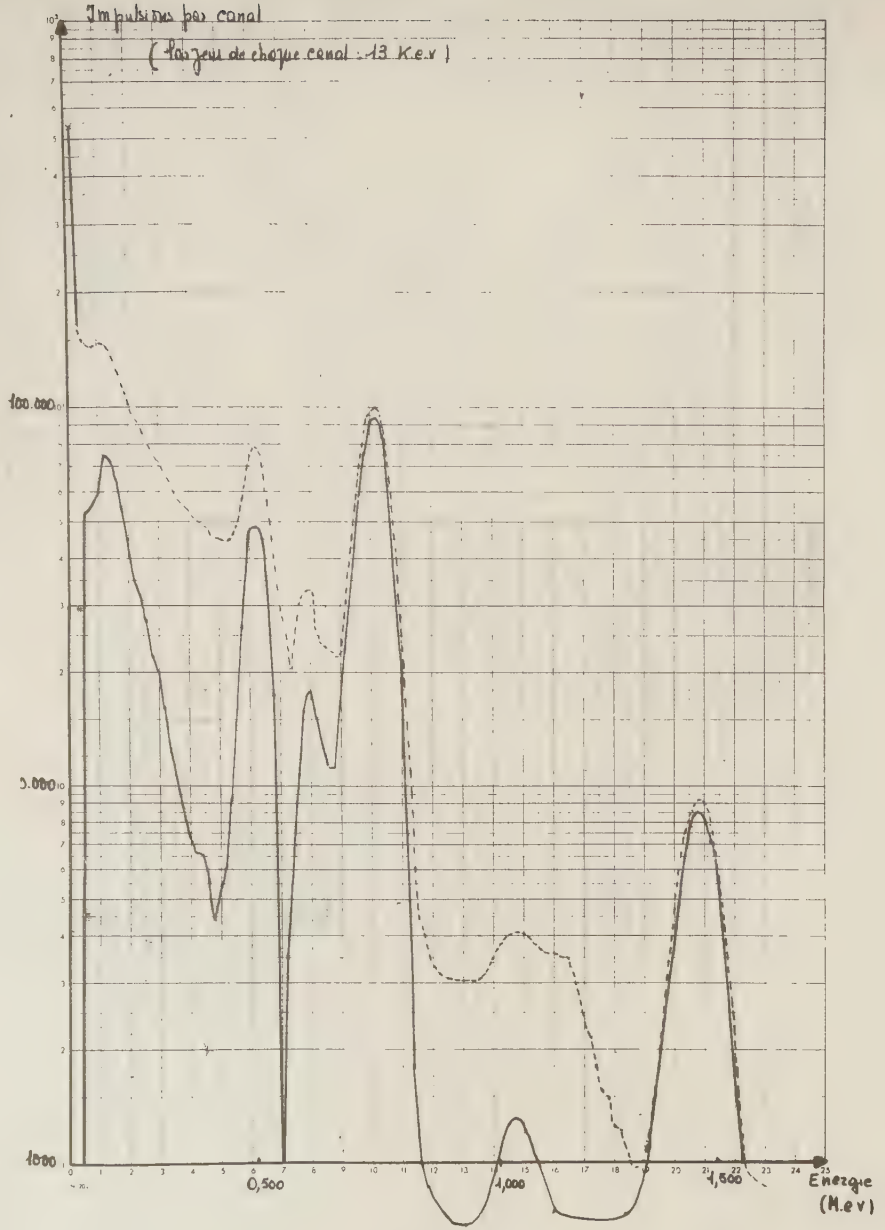


FIGURE 64

SPECTRE γ OBTENU SUR UNE EAU RENFERMANT ^{40}K, ^{95}Zr - ^{95}Nb, ^{106}Ru - ^{106}Rh
EN CONCENTRATION CONNUE AVEC PRECISION

-------- SPECTRE γ OBTENU AVEC DETECTEUR A CRISTAL INa(Tl)' 7,5 x 7,5 cm
_____ SPECTRE γ OBTENU APRES SUPPRESSION DES DISTRIBUTIONS COMPTON

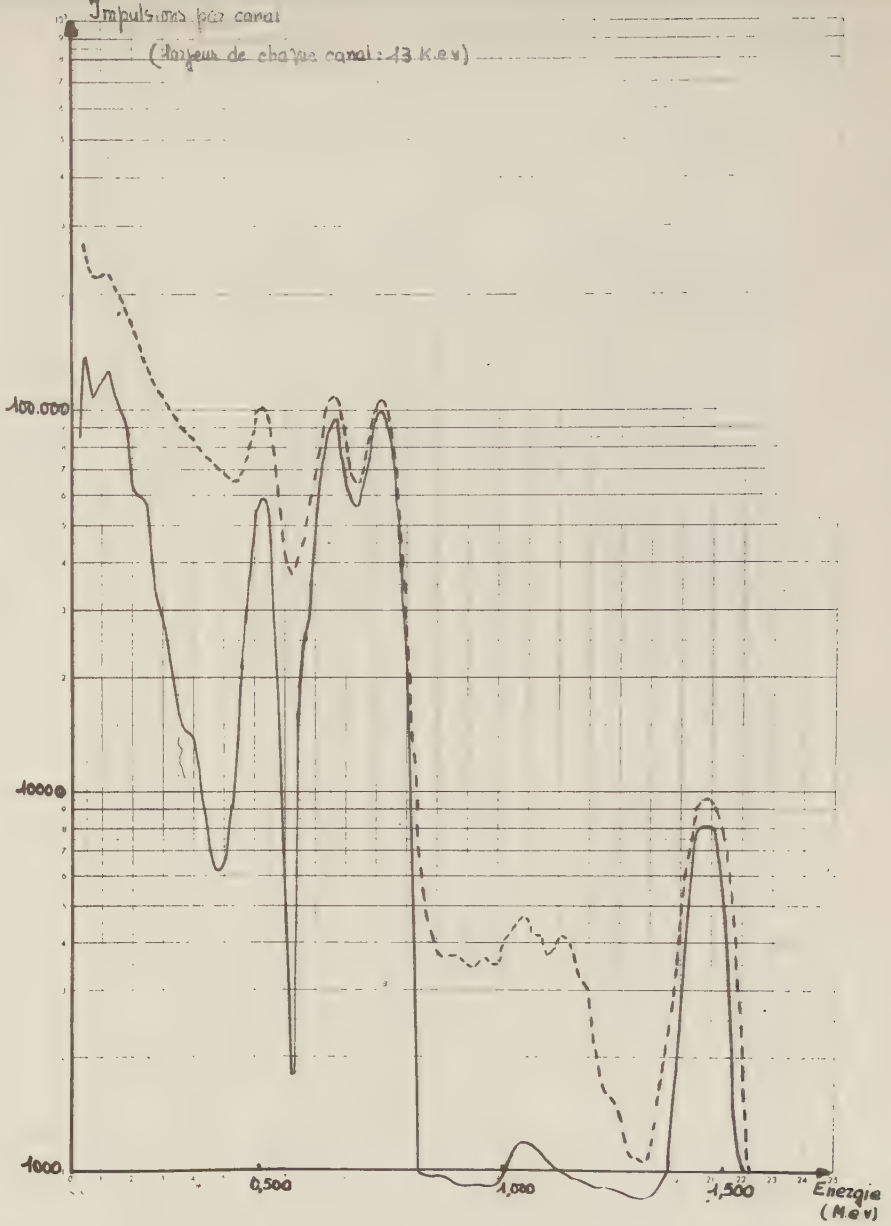


FIGURE 65

SPECTRE γ OBTENU SUR UNE EAU RENFERMANT ^{40}K, ^{95}Zr - ^{95}Nb, ^{106}Ru - ^{106}Rh, ^{137}Cs
EN CONCENTRATION CONNUE AVEC PRECISION

-------- SPECTRE γ OBTENU AVEC DETECTEUR A CRISTAL INa(Tl) 7,5 x 7,5 cm
_____ SPECTRE γ OBTENU APRES SUPPRESSION DES DISTRIBUTIONS COMPTON

4. Vérification de la méthode proposée par l'étude de solutions d'activité γ connue.

Les différentes expériences relatées dans ce chapitre nous permettent de conclure qu'avec l'ensemble de mesure mis au point on peut, en principe, identifier et doser à l'état de trace tout radioélément présent dans une eau.

Avant d'appliquer cette technique à l'étude de solutions dont la composition en nuclides et l'activité sont inconnues, nous avons voulu néanmoins vérifier sur des mélanges connus de radioéléments l'exactitude des mesures effectuées et par conséquent des résultats obtenus.

Pour cela nous contaminons artificiellement une eau, initialement inactive, en lui ajoutant plusieurs éléments radioactifs, à une concentration connue avec précision.

Deux expériences ont été réalisées dans ce but : la première avec 3 radioéléments, le seconde avec 4 radioéléments.

lère expérience

A 9,750 litres d'une solution de KCl (60 g °/oo) préparée en dissolvant ce sel dans l'eau ordinaire, de radioactivité négligeable, (activité totale inférieure à 10 pC/litre) nous avons ajouté un volume déterminé de solutions étalons de :

- ^{95}Zr - ^{95}Nb représentant une activité de 11 800 pC/litre, c'est à dire bien inférieure (d'un facteur voisin de 10) à celle qui correspond à la C.M.A.P. de cet élément.

- ^{106}Ru - ^{106}Rh représentant une activité de 41 750 pC/litre (légèrement supérieure à la C.M.A.P. de cet élément).

La concentration de ^{40}K, dû au ClK, représente une activité de 24 500 pC/litre. Après adjonction d'entraineurs et brassage de la solution pour assurer sa parfaite homogénisation, nous versons celle-ci dans le récipient sphérique placé dans la chambre blindée. On effectue alors la mesure dans les conditions précisées plus haut, c'est à dire en 210 minutes pour chaque sonde.

Nous donnons dans la FIGURE 64-le spectre γ obtenu avec le détecteur à cristal INa(Tl) après déduction du mouvement propre.

-le même spectre après déduction du mouvement propre et des distributions Compton. C'est sur celui-ci, beaucoup plus simple, que

nous faisons porter notre étude.

Il comporte 5 raies correspondant aux énergies de 1,460 - 0,750 - 0,620 - 0,500 et 0,160 MeV.

1 - Identification des raies.

- sur trois raies (1,460 - 0,750 et 0,500 MeV) on détermine une résolution conforme aux valeurs obtenues sur des solutions pures de ^{40}K, ^{95}Zr - ^{95}Nb, ^{106}Ru - ^{106}Rh. Ceci permet d'affirmer que nous avons affaire à des raies provenant exclusivement de l'absorption totale des photons γ émis par les trois radioéléments cités plus haut.

- la raie de 0,620 MeV est plus difficile à identifier puisqu'on ne peut connaitre avec précision sa largeur à mi-hauteur. L'abcisse de son sommet, son importance vis à vis de celle de 0,500 MeV laisse néanmoins supposer qu'elle est dûe à l'absorption totale du deuxième groupe de photons γ émis par ^{106}Ru - ^{106}Rh.

- enfin, la raie de 0,160 MeV a plusieurs origines :

- pics de rétrodiffusion des photons γ émis par ^{40}K, ^{95}Zr - ^{95}Nb, ^{106}Ru - ^{106}Rh et correspondant aux énergies de 0,220 - 0,190 et 0,160 MeV.

- absorption totale de photons γ d'énergie peu élevée.

Nous verrons dans la deuxième partie de cette étude si cette hypothèse que l'on ne peut écarter pour le moment est conforme à la réalité.

2 - Dosage des radioéléments

Trois radioéléments ont été identifiés dans le mélange : il reste à connaitre leur concentration respective. Celle-ci se détermine facilement à partir de la surface propre à chaque raie d'absorption totale étudiée. Notons, cependant, qu'à l'opposé des deux autres, la raie de 0,750 MeV est perturbée du côté des basses énergies par des impulsions parasites appartenant à la raie de 0,620 MeV. Il faut donc en tenir compte dans les calculs. Ceux-ci ont donné les résultats suivants :

activité de ^{40}K : 27 000 pC/litre de solution
activité de ^{95}Zr - ^{95}Nb : 14 200 pC/litre de solution
activité de ^{106}Ru - ^{106}Rh : 42 000 pC/litre de solution

Les valeurs obtenues sont donc affectées d'une erreur

- de 12 % par excès pour ^{40}K
- de 20 % par excès pour ^{95}Zr - ^{95}Nb
- très faible pour ^{106}Ru - ^{106}Rh

En terminant, signalons que nous avons déterminé l'importance des pics de rétrodiffusion des photons γ émis par les radioéléments identifiés et dosés dans le mélange. En faisant, pour chaque canal du spectromètre γ, la somme des impulsions appartenant à ces pics on obtient des valeurs inférieures à celles que l'on observe dans la raie de 0,160 MeV. Ceci laisserait supposer que l'on a affaire à une nouvelle raie d'absorption totale. Il n'en est rien puisque sa largeur à mi-hauteur - trop importante - ne permet pas de déterminer une valeur correcte pour la résolution de l'ensemble de comptage.

Concluons néanmoins en disant qu'à l'aide du dispositif anti-Compton on ne supprime pas toutes les impulsions parasites logées dans les premières canaux du spectromètre. Ceci rendra délicats l'identification et le dosage dans un mélange, des radioéléments émettant des photons γ de faible énergie (égale ou inférieure à 0,160 MeV).

2ème expérience

Celle-ci complète la première expérience : à la solution précédente, en effet, nous avons ajouté un volume déterminé de solution étalon renfermant ^{137}Cs, représentant une activité de 12 950 pC/litre, c'est à dire inférieure à celle qui correspond à la C.M.A.P. de cet élément.

Le spectre γ obtenu est beaucoup plus complexe même après suppression des distributions Compton (cf. FIGURE 65) : la raie dûe au ^{137}Cs (raie C) (0,660 MeV) s'intercale entre celles de ^{95}Zr - ^{95}Nb (raie D) (0,750 MeV) et de ^{106}Ru - ^{106}Rh (raie A) (0,500 MeV) , masquant complètement la raie de 0,620 MeV (^{106}Ru - ^{106}Rh) (raie B).

Les raies B, C, D empiètent donc les unes sur les autres : pour calculer leur surface vraie il est nécessaire, au préalable,de déterminer avec précision leur interférence réciproque.

- on connait exactement la hauteur et la surface de A : on peut donc construire à priori B qui appartient au même élément. On détermine alors facilement l'influence qu'exerce B sur C.

- le même raisonnement s'applique à la raie D : son sommet et son bord droit ne sont perturbés par aucune impulsion parasite : il n'en est pas de même pour son bord gauche que l'on établit à priori : on connait alors l'influence qu'elle exerce sur C.

Dans ces conditions, toutes les raies sont utilisables puisque leur hauteur et leur surface respectives sont ramenées à leur vraie valeur.

Pour cette expérience on a obtenu les résultats suivants :

activité de ^{40}K : 25 500 pC/litre de solution
activité de ^{95}Zr - ^{95}Nb : 15 000 pC/litre de solution
activité de ^{137}Cs : 13 500 pC/litre de solution
activité de ^{106}Ru - ^{106}Rh: 50 200 pC/litre de solution

soit une erreur

de 5 % par excès pour ^{40}K
20 % par excès pour ^{95}Zr - ^{95}Nb
5 % par excès pour ^{137}Cs
20 % par excès pour ^{106}Ru - ^{106}Rh

Comme dans l'expérience précédente, nous avons soustrait des impulsions logées dans les premiers canaux du spectromètre γ celles qui appartiennent aux pics de rétrodiffusion des photons γ émis par les radioéléments présents dans le mélange. Après cette opération il reste encore dans ces canaux un certain nombre d'impulsions dont on ne peut préciser l'origine. Elles constituent une cause d'incertitude dans l'identification et le dosage des radioéléments émettant des photons γ de faible énergie.

Une conclusion s'impose à la suite de ces deux expériences : il est possible avec la méthode proposée, d'identifier et de doser en même temps dans l'eau plusieurs radioéléments à une concentration voisine ou même bien inférieure à leur C.M.A.P. Leur appréciation quantitative ne se fait pas sans une certaine erreur indépendante, semble t'il, du nuclide étudié et dont la valeur moyenne se situe aux environs de 15 %, ce qui est acceptable pour d'aussi faibles activités.

CHAPITRE VIII

Quelques applications de la méthode proposée

La méthode que nous venons de décrire permet l'identification et le dosage des radioéléments au sein d'un prélèvement d'eau, quelque soit l'origine de celle-ci : eau de source, pluie, rivière ou fleuve ; liquides de rejets radioactifs.

Nous verrons qu'il est même possible de l'appliquer à l'étude de la radioactivité du lait.

Nous ne rappellerons pas le mode opératoire puisque celui-ci, identique dans tous les cas, a déjà été décrit.

1. Avant d'exposer les résultats obtenus sur différents échantillons et d'en tirer les conclusions, précisons certains points de détails portant sur la récolte et la préparation des prélèvements.

1.1. Eaux de rivière ou de fleuve

Celles-ci renferment toujours des matières en suspension de nature et d'importance variables, suivant les conditions du prélèvement (profondeur, crue, débit du fleuve etc...)

Il faut savoir, d'autre part, que les radioéléments présents dans l'eau ont tendance à s'adsorber partiellement sur les particules en suspension. La sédimentation progressive de ces dernières a pour effet de modifier, sans qu'il soit possible d'y remédier, la répartition de l'activité dans la bonbonne ; on a donc intérêt à filtrer l'eau avant d'effectuer les mesures. Celles-ci permettent donc de déterminer simplement la concentration de l'eau en nuclides en solution.

Si l'on veut connaitre la radioactivité totale, il suffit de faire une deuxième mesure sur le résidu de filtration.

1.2. Eaux de pluie

La précaution précédente s'applique également dans ce cas.

1.3. Eaux de source

On recherche dans celles-ci essentiellement le radium et ses descendants :

- tout d'abord le radon $^{222}_{86}Rn$. Sa période est de 3,82 jours et il se désintègre en émettant un rayonnement α.

- il se produit alors toute une série d'éléments solides à courte vie qui constituent le dépot actif à évolution rapide.

C'est justement grâce à l'un de ces éléments, RaC ou $^{214}_{83}Bi$, γ émetteur, que l'on peut détecter par spectrométrie γ la présence de radium et radon dans l'eau, tous deux émetteurs α purs. Les conditions de prélèvement des échantillons sont primordiales si l'on veut obtenir des résultats satisfaisants : il s'agit, en effet, de receuillir les eaux de telle façon que le radon ne s'en échappe pas avant ou pendant les comptages ni ne s'accumule en un seul point du récipient dans lequel s'effectue la mesure. C'est pourquoi, nous disposons au Laboratoire d'une bonbonne spécialement affectée au dosage de la radioactivité des eaux de source. Cette bonbonne ne diffère de celle que nous avons décrite précédemment que par son orifice de remplissage qui est entouré d'une collerette de 7 cm de hauteur. Ce dispositif est conçu pour qu'après avoir rempli ce récipient on puisse le boucher sans emprisonner de bulles d'air dans lesquelles le radon pourrait diffuser. Le prélèvement se fait au griffon de la source directement dans cette bonbonne.

1.4. Liquides de rejet d'effluents radioactifs.

Ceux-ci possèdent une radioactivité trop importante pour être mesurés directement. On procède donc à leur dilution préalable en mélangeant un volume déterminé (quelques ml) de ces liquides à 10 litres d'eau ordinaire ajustée à pH convenable et renfermant des entraineurs pour les différents radioéléments que l'on veut doser.

1.5. Contamination des récipients servant à la mesure

A l'exception de celles de source, toutes les eaux ainsi que les liquides de rejet sont mesurées dans le même récipient qui risque dès lors de se contaminer progressivement.

Pour éviter qu'un tel phénomène se produise, nous rinçons la bonbonne après chaque expérience avec une solution maintenue à 80° de R.B.S. 25 à 20 % renfermant un agent tensio-actif et un complexant. Après un temps de contact de 30 minutes, nous vidons la bonbonne et la rinçons à jets continus avec de l'eau ordinaire puis de l'eau distillée. Ce traitement élimine toutes traces de radioéléments et le mouvement propre de l'ensemble de comptage se maintient constamment à la valeur que nous avions obtenue lors de nos expériences préliminaires.

Il nous faut cependant signaler une exception : toutes les fois que nous avons effectué des mesures sur des solutions renfermant ^{95}Zr - ^{95}Nb, nous avons constaté une contamination qui résiste au traitement que nous venons de décrire, même lorsque l'on prolonge le temps de contact. Il faut alors enlever les deux logements des sondes et décaper les parois internes du récipient avec une pâte épaisse préparée en humectant d'eau une poudre vendue dans le commerce à usage domestique. On réalise ainsi une excellente décontamination. Cette opération qui nécessite néanmoins un certain temps, risque de se renouveller assez souvent puisque ^{95}Zr et ^{95}Nb sont deux éléments que l'on rencontre couramment dans les divers échantillons étudiés.

C'est pourquoi, pour éviter cette difficulté,nous nous proposons de confectionner des sacs minces en chlorure de vinyle qui s'adaptent parfaitement aux parois internes du récipient ainsi qu'aux logements des sondes. Il suffira lors de chaque mesure de disposer un de ces sacs dans la bonbonne, de le remplir de la solution que l'on veut étudier. Les comptages une fois effectués, on vide le sac de son contenu en le perçant au niveau de l'orifice d'évacuation du récipient à l'aide d'une tige de verre ou de métal. On évite ainsi toute contamination de la bonbonne dont les parois ne se trouvent jamais en contact direct avec les solutions radioactives.

2. Résultats obtenus sur différents échantillons liquides

2.1. Etude de la contamination radioactive d'une eau de fleuve par des rejets actifs.

Nous avons étudié un certain nombre de prélèvements d'eaux provenant d'un fleuve dans lequel on effectue quotidiennement des rejets d'effluents radioactifs. En réalisant des comptages pendant 210 minutes, nous n'avons jamais obtenu dans chacun des canaux du spectromètre γ un nombre d'impulsions supérieur à celui qui provient du

mouvement propre de notre ensemble de mesure. Ceci revient à dire que nous ne détectons pas la radioactivité de ces prélèvements. Ce résultat ne surprend pas puisque le Centre Atomique responsable des rejets ne déverse d'effluents radioactifs qu'après s'être assuré que la radioactivité apportée à l'eau du fleuve soit inférieure ou au plus égale à la Concentration Maximale Admissible pour les Populations en un mélange inconnu d'émetteurs α, β ou γ , c'est à dire à 10^{-8} µc/ml d'eau.

D'autre part, nous avons vu qu'avec notre ensemble de mesure on peut non seulement identifier les radioéléments présents dans un échantillon liquide mais aussi les doser à des concentrations inférieures à leur C.M.A.P. respective, ceci pour une durée de comptage de 210 minutes.

Toutes ces considérations conduisent à une conclusion très intéressante au point de vue pratique : chaque fois que sur un prélèvement d'eau on ne compte en 210 minutes à l'aide du détecteur à cristal INa(Tl) de 7,5 × 7,5 cm, qu'un nombre d'impulsions inférieur ou égal à celui du mouvement propre de cette sonde, il n'y a pas lieu de poursuivre plus loin les investigations : on peut affirmer d'emblée que l'eau analysée possède une concentration en radioéléments inférieure à leur C.M.A.P. respective.

Ainsi, ce procédé permet de se rendre compte en un temps relativement court si une eau peut être utilisée sans danger par l'homme. Il présente deux avantages essentiels sur la méthode de mesure de l'activité β totale : beaucoup plus rapide que celle-ci puisqu'il est possible d'analyser complètement six échantillons d'eaux en 24 heures, il offre une plus grande sécurité dans les résultats : nous avons vu, en effet, que lorsque l'on effectue une mesure d'activité β sur un résidu d'évaporation d'eau, il est très difficile de convertir les impulsions comptées en désintégrations puisque l'on ne connait pas avec précision l'autoabsorption au sein de l'échantillon et l'efficacité de détection des rayons β émis par la source.

2.2. Eau de pluie

Nous relatons ici des expériences effectuées sur une eau de pluie receuillie à Lyon en juin 1963 dans un récipient cylindrique de 42 cm de diamètre.

Sur celle-ci nous avons effectué avec notre ensemble de comptage une mesure suivant le mode opératoire décrit plus haut. Après soustraction des mouvements propres des sondes et des distributions Compton le spectre γ

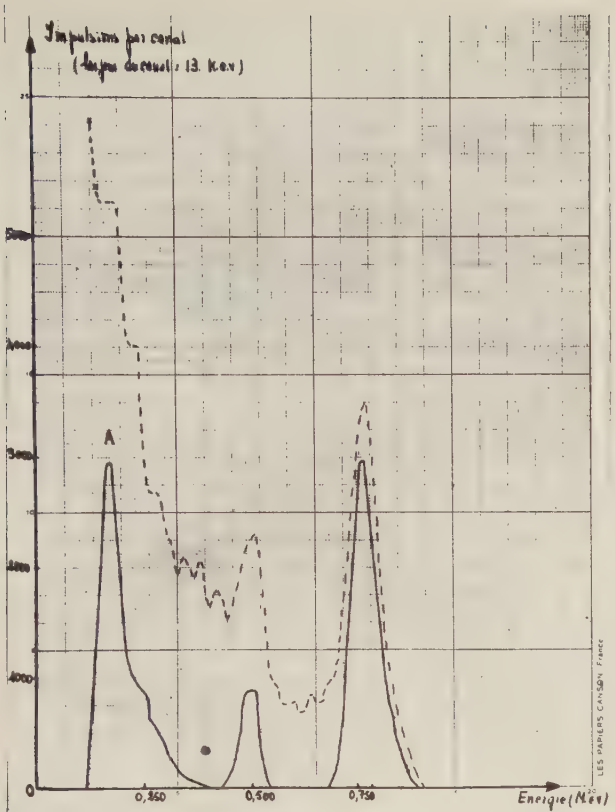


FIGURE 66

SPECTRE γ OBTENU SUR UNE EAU DE PLUIE

-------- Spectre γ obtenu avec la sonde à cristal INa(Tl)
——— Spectre γ après déduction des distributions Compton.

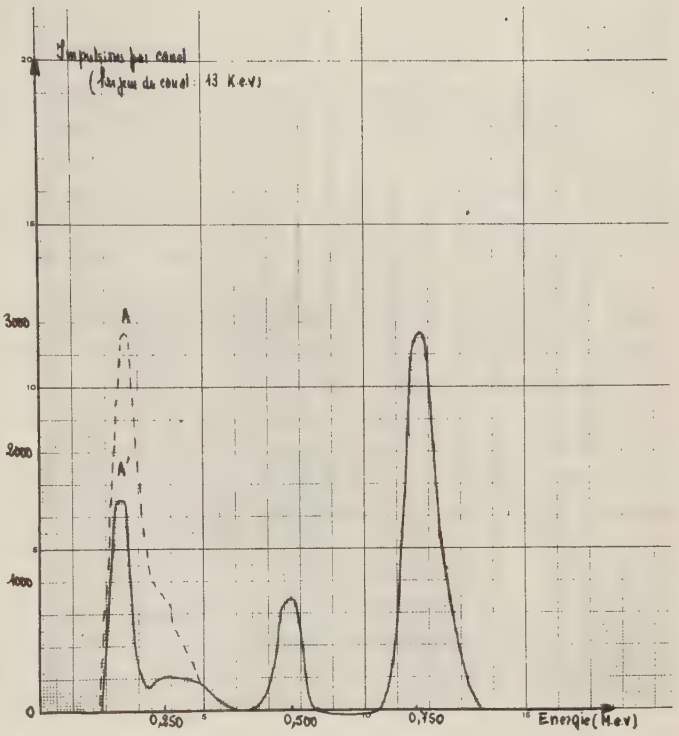


FIGURE 67

SPECTRE γ OBTENU SUR UNE EAU DE PLUIE

Décomposition de A en :-pics de rétrodiffusion de ^{95}Zr - ^{95}Nb et ^{103}Ru
-raie d'absorption totale A' des photons γ émis par ^{141}Ce ou ^{144}Ce - ^{144}Pr.

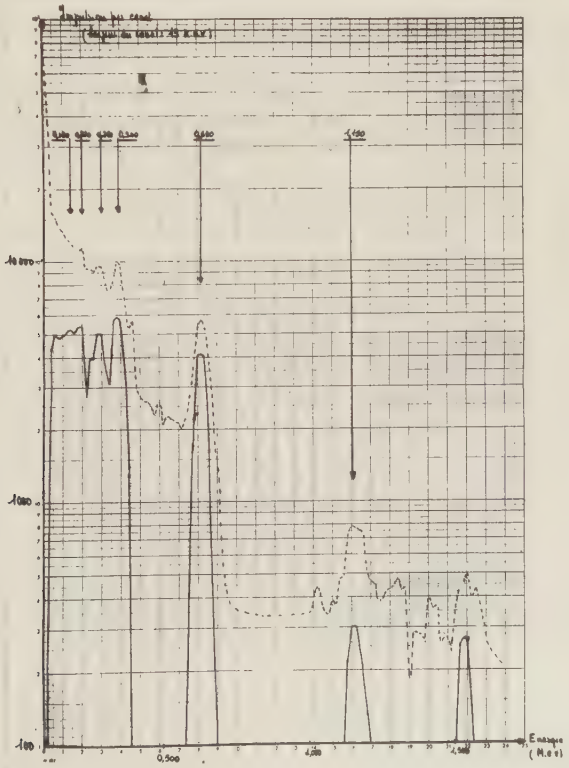


FIGURE 68

SPECTRE γ OBTENU SUR UNE EAU DE SOURCE

-------- SPECTRE γ OBTENU AVEC LE DETECTEUR A CRISTAL INa(Tl)
——— SPECTRE γ APRES DEDUCTION DES DISTRIBUTIONS COMPTON

obtenu ne se compose plus que de trois raies correspondant aux énergies de 0,160 - 0,505 - 0,765 MeV (FIGURE 66)

2.2.1. Le pic A possède une largeur anormale. Les impulsions qui le composent peuvent avoir plusieurs origines :

- absorption totale dans le cristal des photons γ émis par ^{144}Ce - ^{144}Pr (0,134 MeV)

- absorption totale dans le cristal des photons émis par ^{141}Ce (0,142 MeV)

- pics de rétrodiffusion des photons γ dont l'absorption totale dans le cristal conduit aux raies de 0,505 et 0,765 MeV. Ces pics se situent aux énergies de 0,170 et 0,190 MeV.

Il n'y a pas de doute que ces différentes origines se retrouvent au niveau de A puisque sa largeur à mi-hauteur est bien supérieure à celle que l'on calculerait si l'on avait affaire à un pic provenant d'un seul phénomène.

Il est d'ailleurs possible de supprimer dans A toutes les impulsions qui appartiennent aux pics de rétrodiffusion des photons γ d'énergie égale à 0,505 et 0,765 MeV. Pour notre ensemble de comptage nous connaissons en effet :

- la résolution en énergie au niveau de ces pics.

- l'importance de ceux-ci par rapport aux raies d'absorption totale. Nous avons ainsi calculé leurs hauteurs exprimées en impulsions :

1 150 pour ^{95}Zr - ^{95}Nb
545 pour ^{103}Ru

auxquelles correspondent les surfaces s et s' qui peuvent être déduites de A. Il ne subsiste alors qu'une plus petite raie A', légèrement déplacée du côté des basses énergies (0,150 au lieu de 0,160 MeV) et sur laquelle on détermine une valeur correcte pour la résolution de l'ensemble de comptage (cf. FIGURE 67). Nous pensons que cette raie est celle des photons γ émis par ^{141}Ce ou ^{144}Ce - ^{144}Pr. La différenciation entre ces deux éléments est difficile. C'est pourquoi, à partir de cette raie nous calculons deux activités, l'une exprimée en ^{141}Ce, l'autre en ^{144}Ce - ^{144}Pr (cr. TABLEAU XVII) en tenant compte naturellement de l'incertitude mentionnée plus haut.

2.2.2. La détermination de la résolution de l'ensemble de comptage au niveau des deux autres raies

montre bien que celles-ci ne proviennent que de l'absorption totale dans le cristal de photons γ d'énergie déterminée.

2.2.2.1. Nous pensons que la raie de 0,505 MeV est dûe à ^{103}Ru. L'activité de cet élément peut être calculé facilement puisque l'on connait l'efficacité de détection de l'ensemble de comptage pour cette énergie (cf. TABLEAU XVII)

2.2.2.2. La raie de 0,765 MeV révèle la présence dans l'eau de ^{95}Zr - ^{95}Nb. L'activité de ces éléments se calcule comme précédemment (cf. TABLEAU XVII)

Notons enfin que l'erreur faite sur la détermination de ces activités est inférieure à 20 % pour les 3 éléments étudiés (intervalle de sécurité de 2σ).

En conclusion, nous avons mis en évidence dans l'eau de pluie la présence de ^{95}Zr - ^{95}Nb, ^{103}Ru et ^{141}Ce ou ^{144}Ce - ^{144}Pr. Nous avons pu le faire grâce au dispositif anti-Compton. En effet, le spectre obtenu sur ces eaux avec la sonde à cristal INa(Tl) est assez complexe. Après soustraction des distributions Compton et des pics de rétrodiffusion, il se réduit à trois raies d'absorption totale qu'il est facile d'étudier alors aussi bien du point de vue qualitatif que du point de vue quantitatif.

2.3. Mesure de la radioactivité naturelle des eaux de source.

La recherche et le dosage du radon dans les eaux de source ont fait l'objet d'un très grand nombre de travaux. Toutes les méthodes proposées qui dérivent d'ailleurs de celle que Madame CURIE décrit dans son ouvrage "Radioactivité" reposent sur le même principe : il s'agit avant tout d'extraire de l'eau le radon que l'on dose ensuite par le rayonnement α qu'il émet. La principale difficulté de ce mode opératoire réside justement dans cette extraction longue et délicate à mettre en oeuvre, qui risque de ne pas être complète ; de plus, des pertes peuvent se produire lors du transfert du radon de l'eau à l'appareil de mesure.

C'est pourquoi, nous nous sommes proposé d'appliquer la méthode mise au point au Laboratoire au dosage de ce gaz radioactif directement dans l'eau qui le contient. Ce procédé semble à priori possible puisque certains descendants à vie courte du radon sont des émetteurs γ. (cf. TABLEAU XVIII)

T A B L E A U XVII

Raie étudiée (correspondant à une énergie (MeV) de...	0,150		0,505	0,765
Radioélément émetteur γ identifié	^{144}Ce-^{144}Pr	^{141}Ce	^{103}Ru	^{95}Zr-^{95}Nb
Nombre impulsions comptées dans la raie pendant 210 minutes	6 520	6 520	3 700	19 090
Efficacité de détection de l'ensemble de comptage au niveau de cette raie (10^{-3})	35	35	12	7,7
Nombre de photons γ émis par la source pendant 210 minutes	186 470	186 470	307 100	2 480 000
Nombre de désintégrations dont la source est le siège par minute	17 740	1 774	1 625	11 800
Activité exprimée en pC/litre d'eau	880	88	74	530

T A B L E A U XVIII

Composition de la famille du Radium

Période	Eléments	Symbole
1590 ans	Radium	$^{226}_{88}Ra$
3,82 jours	Radon	$^{222}_{86}Rn$
3,05 minutes	Ra A	$^{218}_{84}Po$
26,8 minutes	Ra B	$^{214}_{82}Pb$
19,7 minutes	Ra C	$^{214}_{83}Bi$
Ra C' : $1,6.10^{-7}$ minute Ra C" : 1,3 minute	Ra C" (α, 0,03%) ; Ra C' (β + γ, 99,7%)	Ra C" : $^{210}_{81}Tl$ Ra C' : $^{214}_{84}Po$
25 ans	Ra D	$^{210}_{82}Pb$
5 jours	Ra E	$^{210}_{83}Bi$
138 jours	Ra F	$^{210}_{84}Po$
stable	Ra G	$^{206}_{82}Pb$

I Dépôt actif à évolution rapide
II Dépôt actif à évolution lente.

Pour le vérifier nous avons étudié une eau de source prélevée au griffon, (Temps : T_o) dans le récipient sphérique qui sert à la mesure. Celui-ci, une fois rempli, est immédiatement bouché sans emprisonner de bulles d'air.

On effectue alors au temps T_o + 10 h 30 un comptage suivant le mode opératoire décrit plus haut.

2.3.1. Identification des radioéléments émetteurs γ présents dans l'eau.

Dans la FIGURE 68, nous mentionnons
- le spectre γ (X) obtenu avec la sonde à cristal INa(Tl)

- le même spectre γ (Y) après déduction des distributions Compton. Sur celui-ci on note des raies pour des énergies de 0,180 - 0,220 - 0,280 - 0,340 - 0,630 - 1,150 MeV. Ces énergies correspondent sensiblement, à l'exception de 0,220 MeV, à celles des principaux photons γ émis par $^{214}_{82}Pb$ ou Ra B (période 26,8 minutes) et $^{214}_{83}Bi$ ou Ra C (période 19,7 minutes) (cf. TABLEAU XIX)

TABLEAU XIX

Energie des principaux photons γ émis par les descendants à courte vie du radon (MeV)		Energie des correspondants aux raies observées dans le spectre γ obtenu sur l'eau analysée (MeV)
$^{214}_{82}Pb$	0,060	
"	0,180	0,180
"	0,300	0,280
"	0,360	0,340
$^{214}_{83}Bi$	0,610	0,630
"	0,770	petit pic à 0,73
"	1,130	1,150
"	1,760	1,550

On peut donc déjà conclure, à la vue de ce spectre, que l'eau analysée contient $^{214}_{82}Pb$ et $^{214}_{83}Bi$, tous deux descendants à vie courte du radon.

De plus, le fait qu'on ait pu encore les détecter 10 h 30 après le prélèvement indique que l'eau renferme également du radon.

La question qui se pose alors est de savoir si il y a aussi du radium. Elle est résolue en étudiant l'activité γ globale de l'eau en fonction du temps :

- si l'eau ne renferme que du radon, la décroissance doit se faire avec la période de cet élément.

- si l'on a un mélange radium-radon, l'activité doit demeurer constante (radon en équilibre) ou évoluer vers une activité limite (supérieure ou inférieure).

2.3.2. Etude de la décroissance de l'activité en fonction du temps.

Une mesure de l'activité γ globale est réalisée au temps T_o + 50 heures pendant 10 jours consécutifs en durée de 105 minutes pour chaque comptage.

On note :

- une diminution progressive de l'activité γ. Celle-ci atteint une valeur égale à la moitié de l'activité initiale au bout de 5 640 minutes : ce qui correspond bien à la période du radon (3,8 jours)

- au bout du dixième jour, l'activité γ est presque négligeable.

En conclusion, l'eau renferme uniquement du radon et des descendants à période courte.

2.3.3. Détermination de l'activité de l'eau au temps T_o

On la réalise sur le spectre γ, débarassé des distributions Compton, obtenu au temps T_o + 10 h 30. Pour cela, on étudie la raie bien isolée et facilement identifiable provenant de l'absorption totale des photons γ de 0,630 MeV émis par $^{214}_{83}Bi$. Cet élément émet un photon γ de cette énergie pour trois désintégrations. Il est en équilibre radioactif avec Radon, Ra A, Ra B, Ra C, Ra C'.

A partir de ces connaissances, il est facile de déterminer l'activité de l'eau.

Calculs

- La surface de la raie d'absorption totale, exprimée en impulsions pour la durée du comptage (210 minutes) est de 13 050)

- L'efficacité de détection de notre ensemble de comptage pour des photons de cette énergie est de $9,0.10^{-3}$.

Les 10 litres d'eau, dont on effectue la mesure, sont le siège de l'émission de 1 450 000 photons γ de 0,610 MeV pendant 210 minutes.

L'activité de l'eau, ramenée au temps T_o, est de

$1{,}09.10^{-3}$ µc de $^{214}_{83}Bi$ par litre

$1{,}09.10^{-3}$ µc de Radon par litre

$5{,}46.10^{-3}$ µc du mélange Radon + descendants à période courte.

En conclusion,

- bien que notre expérience sur le dosage du radon par la méthode proposée se limite seulement à ce que nous venons de décrire,

- bien que nous n'ayons pu comparer nos résultats avec ceux que l'on obtiendrait en employant une des méthodes classiques préconisées pour le dosage de cet élément,

nous pensons que ce procédé, relativement rapide et évitant surtout l'extraction du radon, peut être appliqué avec succès. Son étude sera poursuivie et complétée dans un prochain travail qui permettra de déterminer les conditions précises du mode opératoire et de vérifier sur des solutions étalons de radium en équilibre avec ses descendants à période courte si l'efficacité de détection de notre ensemble de comptage correspond bien à celle que nous avons obtenue dans cette expérience. J.R.W. KERR et coll. signalent dans un article récent que le polyéthylène aurait la propriété d'adsorber le radon contenu dans une eau. Nous n'avons pas mis en évidence d'une façon manifeste ce phénomène lorsque nous avons effectué les mesures sur l'eau placée dans la bonbonne. Cette question fera néanmoins l'objet d'une étude plus approfondie.

2.4. Liquides de rejets radioactifs

Par suite de l'amélioration constante des méthodes employées, les Centres Atomiques parviennent à extraire des liquides actifs la plupart des radioéléments. C'est pourquoi, les effluent dont ils se débarassent, dans un fleuve par exemple, ne renferment plus que les quelques nuclides qui ont échappé aux différents procédés de décontamination (^{144}Ce-^{144}Pr, ^{141}Ce, ^{103}Ru, ^{106}Ru-^{106}Rh, ^{95}Zr-^{95}Nb, ^{137}Cs à l'état de traces).

L'analyse qualitative et quantitative des spectres γ obtenus sur de tels rejets devient dès lors relativement facile.

Nous donnons à titre d'exemples les résultats des mesures effectuées sur 3 rejets. Dans les deux premiers on ne met en évidence que ^{103}Ru et ^{144}Ce-^{144}Pr ou ^{141}Ce. Le troisième contient en plus ^{137}Cs (cf. ~~TABLEAUX~~ FIGURES 69, 70, 71

TABLEAUX XX, XXI, XXII).

Pour le calcul de l'activité propre à chaque radioélément, nous étudions dans les spectres γ obtenus les différentes raies d'absorption totale comme il est indiqué dans le paragraphe relatif à l'eau de pluie. Signalons que la raie correspondant à ^{144}Ce-^{144}Pr ou ^{141}Ce ne peut être analysée correctement qu'après avoir soustrait les impulsions parasites provenant de la rétrodiffusion des photons γ émis par ^{103}Ru et ^{95}Zr-^{95}Nb.

Notons enfin que la comparaison de nos résultats avec ceux qu'a obtenus sur les mêmes rejets un autre laboratoire révèle une bonne similitude.

En conclusion, nous pensons que la méthode décrite dans ce travail permet de déterminer avec exactitude la composition qualitative et quantitative des liquides de rejet en un temps très court : il suffit, en effet, pour diminuer les durées de comptage avec chacune des sondes, tout en conservant une bonne précision dans les mesures, d'augmenter le volume de liquide actif que l'on analyse.

Etude du liquide de rejet radioactif A

1 - Conditions de la mesure : 2 ml du liquide de rejet ont été mélangés à 10 litres d'eau ordinaire contenue dans le récipient de mesure.
Mesures effectuées avec les deux sondes en 210 minutes.

2 - Résultats

- le spectre γ obtenu avec la sonde à cristal INa(Tl) comprend deux raies bien distinctes aux énergies de 0,500 et 0,605 MeV.

- après la soustraction des distributions Compton, il apparait un pic correspondant à une énergie de 0,140 MeV

3 - Discussion

- les deux raies situées à 0,500 et 0,605 MeV peuvent provenir de l'absorption totale des photons γ émis par ^{106}Ru-^{106}Rh (0,513 et 0,620 MeV)
ou ^{103}Ru (0,498 et 0,615 MeV)

L'importance respective de chaque raie permet d'affirmer sans aucun doute que l'on a affaire à ^{103}Ru (90 % de photons γ émis avec une énergie de 0,498 MeV et 3 % seulement avec une énergie de 0,615 MeV au lieu de 22 % et 10 % pour ^{106}Ru-^{106}Rh.

- le pic correspondant à une énergie de 0,155 - 0,160 MeV provient de l'accumulation dans les mêmes canaux du spectromètre γ d'impulsions d'origines différentes.

- pics de rétrodiffusion dûs aux photons γ de 0,500 et 0,605 MeV.

- éventuellement raie d'absorption totale de photons γ émis par ^{144}Ce-^{144}Pr ou ^{141}Ce.

La suppression des impulsions appartenant aux pics de rétrodiffusion fait apparaitre une nouvelle raie dont le sommet correspond à une énergie de 0,135 MeV. Cette raie doit provenir de l'absorption totale des photons γ émis par ^{144}Ce-^{144}Pr ou ^{141}Ce.

T A B L E A U XX

Raie étudiée (correspondant à une énergie (MeV) de...	0,135		0,500
Radioélément émetteur γ identifié	^{144}Ce-^{144}Pr	^{141}Ce	^{103}Ru
Nombre d'impulsions comptées dans la raie pendant 210 minutes	39 700	39 700	138 200
Efficacité de détection de l'ensemble de comptage au niveau de cette raie (,10^{-3})	35	35	12
Nombre de photons γ émis par la source pendant 210 minutes	496 000 992 000	992 000	12 022 400
Nombre de désintégrations dont la source est le siège par minute	94 400	9 400	63 600
Activité de 1 ml de rejet (10^{-2} µc)	2,10	0,21	1,40

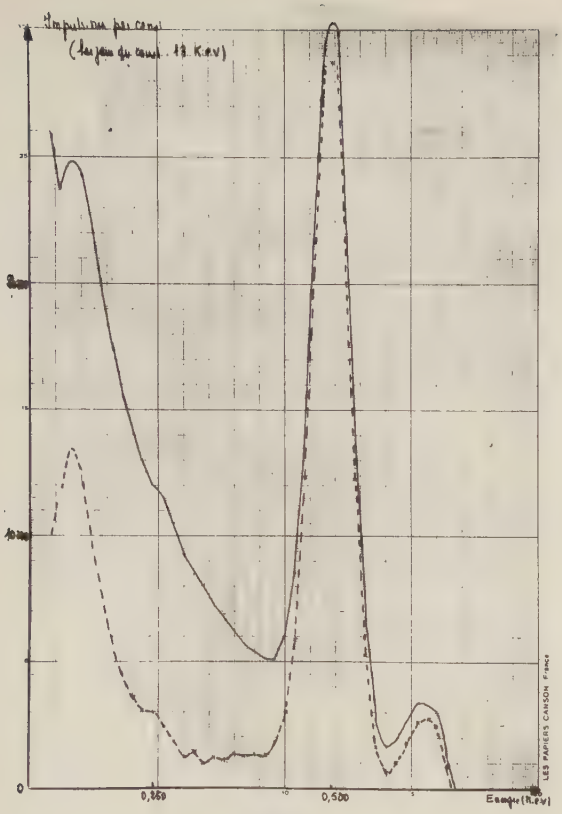


FIGURE 69 a

SPECTRE γ OBTENU SUR LE LIQUIDE DE REJET A

——— Spectre γ obtenu avec la sonde à cristal INa(Tl)
-------- Spectre γ obtenu après déduction des distributions Compton

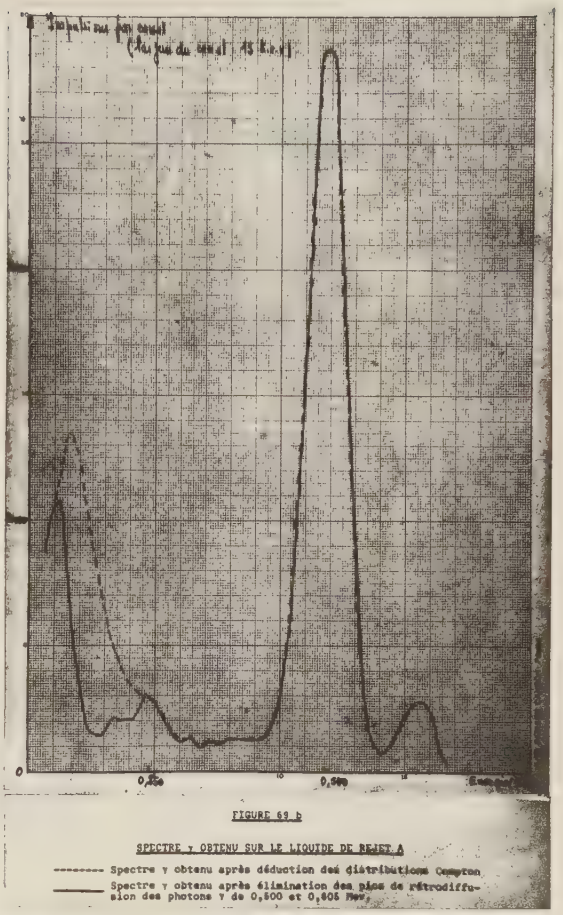


FIGURE 69 b

SPECTRE γ OBTENU SUR LE LIQUIDE DE REJET A

-------- Spectre γ obtenu après déduction des distributions Compton
——— Spectre γ obtenu après élimination des pics de rétrodiffusion des photons γ de 0,500 et 0,605 Mev.

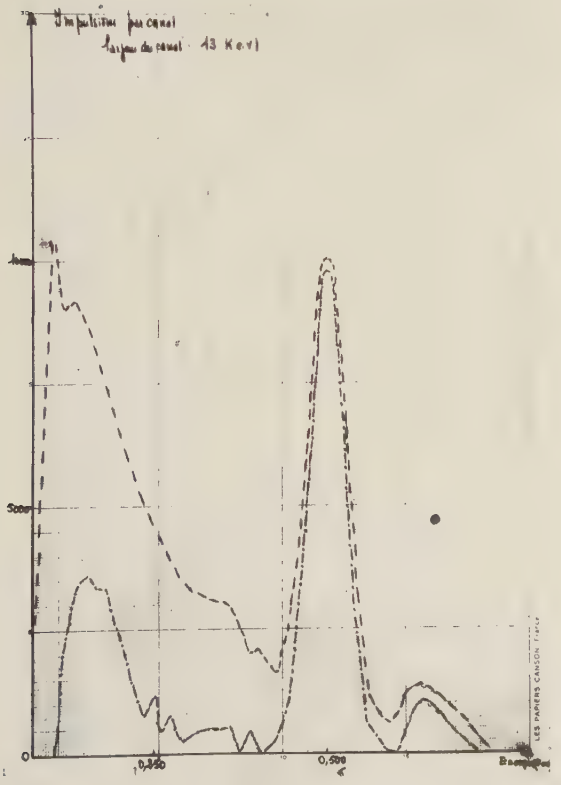


FIGURE 70 a

SPECTRE γ OBTENU SUR LE LIQUIDE DE REJET B

-------- Spectre γ obtenu avec la sonde à cristal INa(Tl)
-.-.-.-. Spectre γ obtenu après déduction des distributions Compton

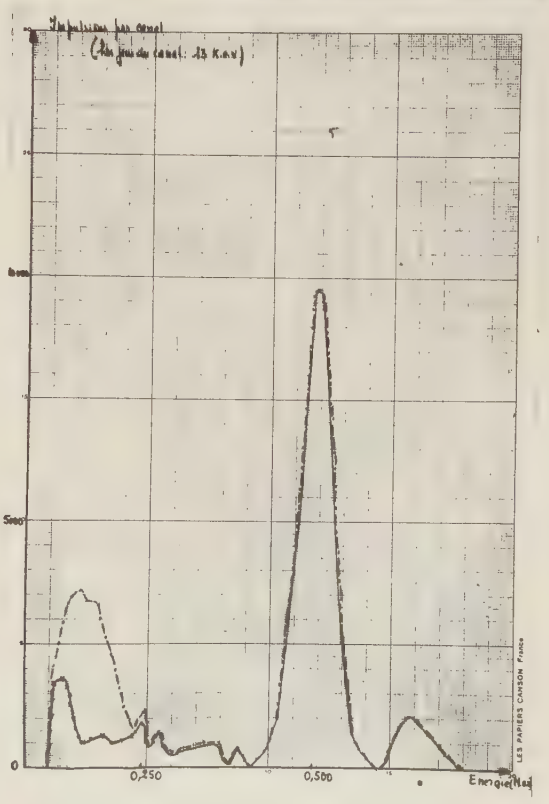


FIGURE 70 b

SPECTRE γ OBTENU SUR LE LIQUIDE DE REJET B

-------- Spectre γ obtenu après déduction des distributions Compton
——— Spectre γ obtenu après élimination des pics de rétrodiffusion des photons γ de 0,500 et 0,605 Mev.

Etude du liquide de rejet radioactif B

1 - Conditions de la mesure :

1 ml du liquide rejet a égé mélangé à 10 litres d'eau ordinaire.

Les autres conditions sont identiques à celles du cas précédent.

2 - Résultats

- comme pour le liquide de rejet A le spectre γ obtenu dans ce cas comprend 2 raies aux énergies de 0,500 et 0,605 MeV.

- après la soustraction des distributions Compton il apparait un pic correspondant à une énergie de 0,150 - 0,160 MeV.

3 - Discussion

Celle-ci identique à celle que nous avions faite dans le cas précédent permet d'affirmer que le liquide de rejet B renferme ^{103}Ru et ^{144}Ce-^{144}Pr ou ^{141}Ce.

T A B L E A U XXI

Raie étudiée correspondant à une énergie (MeV) de...	0,140		0,500
Radioélément émetteur γ identifié	^{144}Ce-^{144}Pr	^{141}Ce	^{106}Ru
Nombre d'impulsions comptées dans la raie pendant 210 minutes	6 740	6 740	46 950
Efficacité de détection de l'ensemble de comptage au niveau de cette raie ($.10^{-3}$)	35	35	12
Nombre de photons γ émis par la source pendant 210 minutes	168 500	168 500	4 084 000
Nombre de désintégrations dont la source est le siège par minute	11 300	1 130	21 610
Activité de 1 ml de rejet (10^{-2} µc)	0,5	0,05	1

Etude du liquide de rejet radioactif C

1 - Conditions de la mesure

Les conditions de la mesure diffèrent sensiblement de celles que nous avions adoptées précédemment :

20 ml de liquide de rejet ont été ajoutés à 10 litres d'eau ordinaire.

Mesures effectuées avec les deux sondes en 52 minutes.

2 - Résultats

Le spectre γ obtenu présente 3 raies aux énergies de 0,160 - 0,495 - 0,660 MeV.

La suppression des distributions Compton fait apparaitre une nouvelle raie, correspondant à une énergie de 0,615 MeV, empiètant légèrement sur celle de 0,660 MeV.

3 - Discussion

1) La raie située à 0,660 MeV possède une largeur à mi-hauteur (résolution de l'ensemble de comptage mesurée à son niveau : 10 %) qui permet d'affirmer que l'on a affaire à une raie pûre provenant de l'absorption totale des photons γ émis par ^{137}Cs. Elle est légèrement perturbée du côté des basses énergies par des impulsions parasites appartenant à la raie de 0,615 MeV. Pour calculer sa surface exacte il faut soustraire au préalable ces impulsions.

2) La raie situé à 0,495 MeV, à l'opposé de ce que nous avions obtenu dans les deux précédents spectres, est dûe à ^{106}Ru-^{106}Rh. Notre affirmation repose sur l'importance de la raie voisine (0,615 MeV) appartenant au même élément.

3) Enfin, pour étudier la dernière raie, il est nécessaire d'éliminer toutes les impulsions parasites provenant des pics de rétrodiffusion des photons γ de 0,660 0,615 et 0,495 MeV.

T A B L E A U XXII

Raie étudiée (correspondant à une énergie (MeV) de ...	0,145		0,495	0,660
Radioélément émetteur γ identifié	^{144}Ce-^{144}Pr	^{141}Ce	^{106}Ru-^{106}Rh	^{137}Cs
Nombre d'impulsions comptées dans la raie pendant 52 minutes	12 000	12 000	8 920	36 380
Efficacité de détection de l'ensemble de comptage au niveau de cette raie (10^{-3})	35	35	12	9
Nombre de photons γ émis par la source pendant 52 minutes	340 000	340 000	746 170	4 040 000
Nombre de désintégrations dont la source est le siège par minute	130 800	13 080	65 224	94 700
Activité de 1 ml de rejet (10^{-3})	2,94	0,29	1,40	2,20

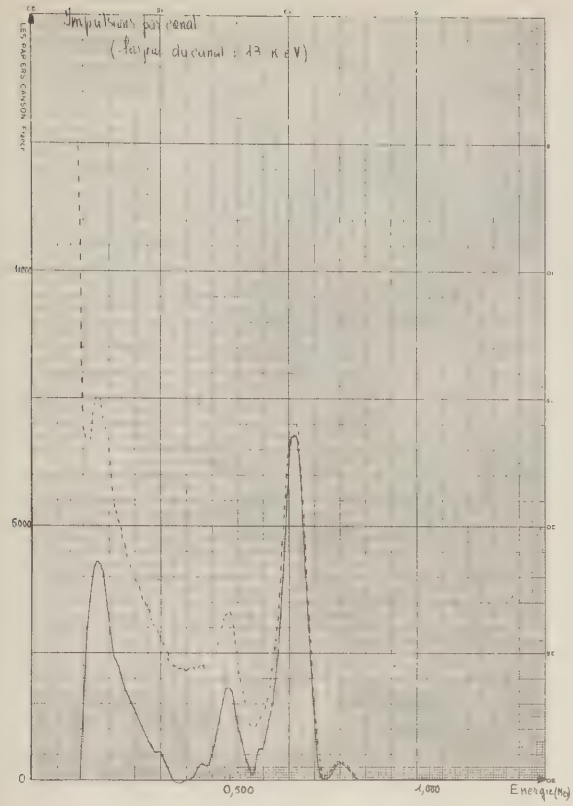


FIGURE 71 A

SPECTRE γ OBTENU SUR LE LIQUIDE DE REJET C

-- Spectre γ obtenu avec la sonde à cristal INa (TC)
——— Spectre γ obtenu après déduction des distribution Compton.

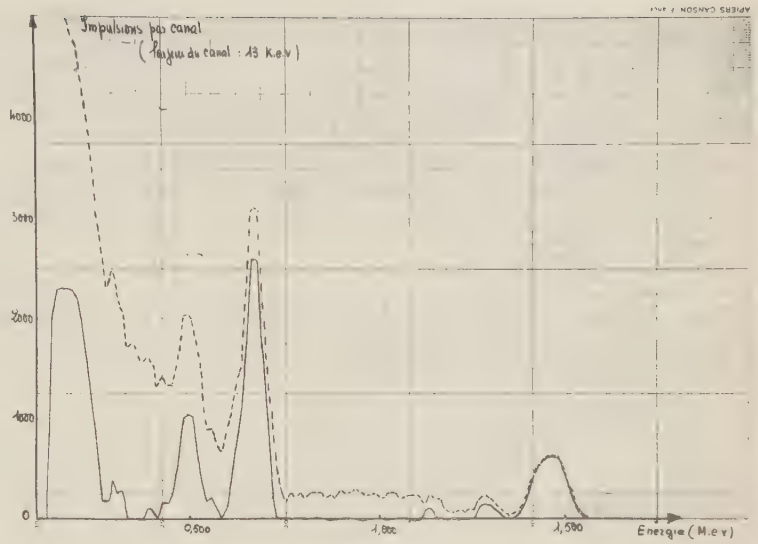


FIGURE 72 A

SPECTRE γ OBTENU SUR UN ECHANTILLON DE LAIT

-------- Spectre γ obtenu avec la sonde à cristal INa(Tl)
——— Spectre γ obtenu après déduction des distributions Compton

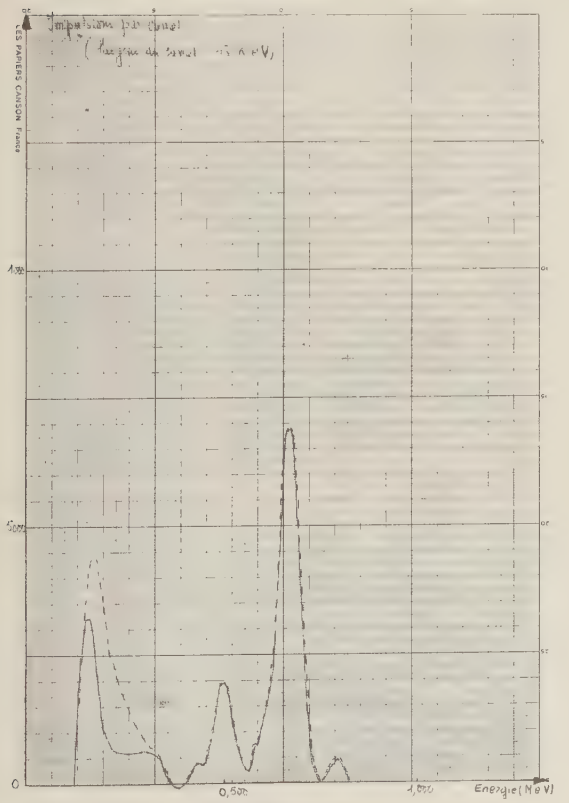


FIGURE 71 B

SPECTRE γ OBTENU SUR LE LIQUIDE DE REJET C

- - Spectre γ obtenu après déduction des distributions Compton
——— Spectre γ obtenu après élimination des pics de rétrodiffusion des photons γ de 0,660 0,615 et 0,495 Mev.

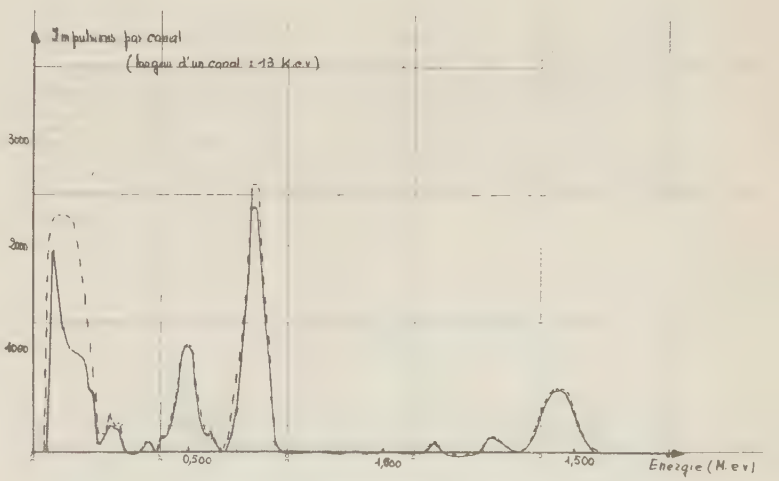


FIGURE 72 B

SPECTRE γ OBTENU SUR UN ECHANTILLON DE LAIT

-------- SPECTRE γ OBTENU APRES DEDUCTION DES DISTRIBUTIONS COMPTON
——— SPECTRE γ OBTENU APRES ELIMINATION DE LA RAIE SITUEE A 0,620 Mev (^{106}Ru - ^{106}Rh) ET DES PICS DE RETRODIFFUSION

2.5. Etude de la contamination du lait par des radioéléments provenant des retombées

Depuis les premières explosions nucléaires, la mesure de la raidoactivité du lait fait partie des analyses courantes qu'effectuent régulièrement sur le plan national et même international les différents services de protection contre les radiations ionisantes.

Le lait, en effet, peut contenir certains radioéléments qui produits lors d'une explosion nucléaire à haute altitude retombent progressivement sur le sol et contaminent l'herbe qu'ingèrent les vaches.

Nous avons voulu nous rendre compte si la méthode mise au point pour la mesure de la radioactivité des eaux convient également à l'analyse de ce produit.

Nous avons effectué cette expérience en juillet 1963 sur 10 litres de lait destinés aux consommateurs lyonnais.

Le mode opératoire est celui décrit pour l'analyse des eaux.

Dans le spectre γ obtenu après suppression des distributions Compton (cf. FIGURE 72 a) on note 3 raies bien distinctes aux énergies de 1,460 - 0,660 et 0,500 MeV. De plus, on remarque la présence d'un pic assez important dont le sommet correspond à 0,150 MeV.

- La raie de 1,460 MeV provient de l'absorption totale dans le cristal INa(Tl) des photons γ émis par ^{40}K, isotope radioactif naturel du ^{39}K, élément stable, présent normalement dans le lait.

Si l'on calcule à partir de la surface de cette raie l'activité β dûe à ^{40}K, on constate que la valeur obtenue (1 930 pC/litre de lait analysé) correspond sensiblement à celle que l'on détermine en connaissant la concentration normale du lait en potassium : 1 mg de K^+ est le siège, nous l'avons dit, de 1,73 désintégration /minute.

Ce résultat est intéressant :

- avec notre ensemble de comptage on peut mettre en évidence et doser en un temps relativement court (210 minutes) le potassium contenu dans le lait.

- l'efficacité de détection que nous avions déterminée sur des solutions pûres de radioéléments s'applique bien à l'étude de mélange renfermant plusieurs nuclides. Cette conclusion constitue une nouvelle vérification de notre méthode.

- la raie de 0,660 MeV révèle la présence de ^{137}Cs dans le lait. Elle est perturbée du côté des basses énergies par des impulsions provenant de l'absorption totale des photons γ de 0,620 MeV émis par ^{106}Ru-^{106}Rh. Pour déterminer exactement sa surface et connaitre la concentration en ^{137}Cs il faut au préalable soustraire ces impulsions. La FIGURE 70 b rend compte de cette opération. L'activité de ce radioélément calculée alors est de 317 pC/litre.

- la raie de 0,500 MeV a deux origines possibles : absorption totale dans le cristal INa(Tl) des photons γ de 0,498 MeV émis par ^{103}Ru ou de ceux de 0,513 MeV émis par ^{106}Ru-^{106}Rh. Nous optons pour la dernière hypothèse : en effet, comme nous l'avons vu lors de l'étude des spectres γ obtenus sur les liquides de rejet, ^{103}Ru et ^{106}Ru-^{106}Rh émettent chacun un deuxième groupe de photons γ d'énergie très voisine (0,615 et 0,620 MeV) mais d'importance différente lorsqu'on les compare aux photons γ de 0,500 MeV (3 % pour ^{103}Ru au lieu de 50 % pour ^{106}Ru-^{106}Rh).

L'assymétrie observée sur la raie de 0,660 MeV (^{137}Cs) est telle qu'elle ne peut être dûe qu'au nombre élevé d'impulsions provenant de l'absorption des photons γ émis par ^{106}Ru-^{106}Rh (cf. FIGURE 70 a). Il suffit d'ailleurs, nous l'avons vu, de retrancher ces impulsions de cette raie pour transformer celle-ci en une parfaite distribution Gaussienne (FIGURE 72 b).

Dans ces conditions, l'activité apportée au lait par ^{106}Ru-^{106}Rh est de 815 pC/litre.

- enfin, le pic dont le sommet correspond à une énergie de 0,150 MeV provient de l'accumulation dans les mêmes canaux du spectromètre γ d'impulsions d'origines différentes :

- pic de rétrodiffusion (0,220 MeV) des photons γ émis par ^{40}K.

- pic de rétrodiffusion (0,190 MeV) des photons γ émis par ^{137}Cs

- pic de rétrodiffusion (0,160 MeV) des photons γ émis par ^{106}Ru.

La suppression des impulsions appartenant à ces différents pics laisse subsister une nouvelle raie à 0,140 MeV peu importante et sur l'origine de laquelle il est difficile de se prononcer.

En conclusion, nous avons mis en évidence dans un échantillon de lait la présence de trois radioéléments

l'un naturel ^{40}K, les deux autres ^{137}Cs, ^{106}Ru-^{106}Rh, provenant certainement des retombées radioactives. Leur activité respective, déterminée suivant le mode opératoire décrit dans ce travail, correspond aux valeurs obtenues actuellement par les différents Laboratoires qui effectuent des mesures régulières de radioactivité.

La méthode mise au point pour l'analyse des eaux s'applique donc également au lait. En un temps relativement court, on peut non seulement identifier mais aussi doser dans ce produit les différents nuclides qu'il renferme, à l'exception peut-être de ceux qui émettent des photons γ de très faible énergie.

CONCLUSIONS GENERALES

Nous nous sommes proposé dans ce travail de mettre au point une méthode simple et rapide permettant d'effectuer directement sur l'eau, sans traitement préalable de celle-ci, l'analyse qualitative et quantitative de traces de radio-éléments qu'elle renferme. Nous utilisons pour cela un ensemble de spectromètrie γ.

La radioactivité de l'eau peut être naturelle ou artificielle :

1 - radioactivité naturelle

Toutes les eaux, quelle que soit leur origine, renferment des sels de potassium et par suite ^{40}K, isotope radioactif de l'élément stable ^{39}K.

Certaines eaux de source contiennent du radium, du radon et ses descendants à vie courte, plus rarement les radioéléments des familles du thorium et de l'actinium.

2 - radioactivité artificielle dûe :

- aux retombées au sol de produits de fission apparaissant lors des explosions nucléaires.

- aux rejets dans les cours d'eaux de liquides actifs déversés par les centrales nucléaires et à un degré moindre par l'industrie, les laboratoires de recherche et les hopitaux.

A l'exception de celles qui s'appliquent au dosage du radon, toutes les méthodes utilisées se limitent la plupart du temps à la mesure de l'activité α ou β totale effectuée sur le résidu d'évaporation de l'eau. Ce procédé, s'il offre l'avantage d'être simple et rapide, n'en présente pas moins un inconvénient majeur, celui de ne pas identifier le ou les éléments responsables de la radioactivité d'une eau. Ceci constitue une lacune importante puisqu'il n'est pas possible dans ces conditions d'effectuer des mesures absolues d'activité : les résultats ne sont donnés que par rapport à un étalon choisi arbitrairement.

Pour résoudre ce problème nous avons eu recours à la spectrométrie γ.

Les radioéléments présents normalement ou accidentellement dans les eaux sont tous, à l'exception de ^{90}Sr - ^{90}Y émetteurs γ, Le principe de cette méthode s'applique également à la mesure du radon : celui-ci en se désintégrant par émission α donne naissance à des descendants, émetteurs γ.

L'exposé de ce travail comprend deux parties :

Dans la première partie nous avons cru bon de rappeler :

- la nature et les principales propriétés des photons γ, notamment leur interaction avec la matière.

- le principe de la spectromètrie γ et sa mise en oeuvre à l'aide d'analyseurs multicanaux.

- les différents procédés qu'emploient les auteurs dans l'étude et le "dépouillement" des spectres γ complexes obtenus sur des sources renfermant plusieurs radioéléments.

Ces notions classiques nous ont paru nécessaires à la compréhension de notre travail personnel. Celui-ci se résume en une série d'expériences réalisées en vue de mettre au point une méthode permettant l'identification et le dosage des radioéléments présents à l'état de traces dans les eaux.

La deuxième partie de cet exposé comprend la relation détaillée de ces expériences avec les résultats obtenus, l'étude critique de la méthode proposée avec ses possibilités, ses applications et ses limites. Elle se divise en huit chapitres.

Chapitre I

Nous faisons le point des principaux travaux entrepris récemment dans un but voisin du notre :

- dosage de ^{137}Cs dans différents échantillons de lait liquide ou en poudre (K.G. VOHRA et coll., P. GAGLIONE et coll.)

- dosage des radioéléments présents dans l'eau de pluie et de boisson. De nombreuses techniques sont proposées : les unes font appel à une concentration préalable des nuclides par insolubilisation (A.L. BONI) ou par fixation sur résines échangeuses d'ions (R.E. BENTLEY) Certaines autres évitent cette phase préliminaire : citons plus spécialement celle de R.W. PERKINS qui détermine la radioactivité de l'eau de la rivière Columbia après le rejet d'effluents radioactifs. Cet auteur utilise pour

cela un ensemble de mesure constitué d'un spectromètre γ à 256 canaux, d'un détecteur muni d'un très gros cristal puits d'INa(Tl) et de sept photomultiplicateurs.

Les possibilités de notre ensemble de mesure étaient beaucoup plus réduites au début de notre travail. Si nous disposions, en effet, d'un spectromètre γ à 128 canaux, le détecteur utilisé ne comportait qu'un petit cristal d'INa(Tl) de 37,5 mm de diamètre et 25 mm de hauteur. Son efficacité de comptage était faible et sa résolution assez médiocre.

Nous avons néanmoins effectué avec ce matériel un certain nombre d'expériences qui nous ont permis :

- de mettre au point un mode opératoire compatible avec le but poursuivi (Chapitres I, III, IV, V)

- d'envisager les modifications à apporter à l'ensemble de mesure pour améliorer ses performances (Chapitre VI)

Les deux derniers chapitres sont consacrés à l'étude de l'ensemble de mesure définitif (Chapitre VII) et à ses différentes utilisations (Chapitre VIII).

Chapitre II

Devant effectuer le dosage de traces de radioéléments dissous dans l'eau, sans concentration préalable de ceux-ci, nous envisageons dans ce chapitre la répartition de l'eau autour du détecteur pour obtenir le meilleur rendement de comptage.

Les différents auteurs (G.R. HAGEE et coll., P. GAGLIONE et coll.) qui réalisent des mesures analogues utilisent un récipient cylindrique creusé d'un logement dans lequel ils placent le détecteur. Nous nous sommes demandé s'il ne serait pas préférable, dans le cas qui nous intéresse (mesure de faibles activités), d'employer un récipient sphérique dont le centre serait occupé par le cristal scintillant du détecteur.

Nous avons effectué pour cela des comptages sur différentes sources planes minces de radioéléments émettant des photons γ d'énergie variable (^{109}Cd : 0,087 MeV, ^{137}Cs : 0,660 MeV, ^{60}Co : 1,330 MeV) lorsque celles-ci situées à une distance fixe du détecteur décrivent autour du cristal un cercle de rayon égal à 4,75 puis 9,50 cm.

Les résultats confirment notre hypothèse : pour une distance source-détecteur fixe, l'efficacité de comptage reste sensiblement constante quelle que soit l'angle que fait la source avec l'axe du détecteur. Ceci ne se re-

trouve pas avec les dispositifs imaginés par G.R. HAGEE et P. GAGLIONE. Nous adoptons donc pour nos mesures un récipient sphérique.

Les dimensions de celui-ci ont fait également l'objet de recherches : opérant sur des prélèvements peu actifs nous avons intérêt à augmenter le plus possible leur masse ; cependant, on ne peut accroitre indéfiniment le volume d'eau sans créer une certaine autoabsorption des photons γ. Un compromis est nécessaire : pour cela, nous avons étudié les spectres γ obtenus sur des sources de radioéléments (^{40}K puis ^{137}Cs) contenues dans des bonbonnes en chlorure de polyvinyle, sphériques, de capacité différente (4 et 12,775 litres). Celles-ci possèdent un logement destiné à recevoir le détecteur : lorsque celui-ci est en place, le cristal scintillant se trouve situé au centre de la masse d'eau qui l'entoure.

En opérant sur des sources de 12,775 litres, le nombre de photons γ détectés est supérieur à celui que l'on obtient sur 4 litres de solution renfermant la même concentration en radioéléments. De plus, les spectres γ restent identiques dans les deux cas : il n'y a donc pas d'autoabsorption appréciable. En conséquence, nous adoptons, pour nos mesures, les récipients sphériques de 12,775 litres.

Chapitre III

Le mouvement propre d'un ensemble de comptage conditionne l'exactitude des mesures et l'activité limite détectable avec précision. Dans le cas qui nous intéresse, il est indispensable de réduire au minimum ce mouvement propre si l'on veut apprécier de faibles concentrations de radioéléments dans l'eau.

Ce chapitre rend compte des expériences effectuées dans ce but et des conclusions auxquelles nous sommes parvenus :

1 - le mouvement propre du détecteur, pour une énergie de rayonnements γ comprise entre 0 et 2,200 MeV assez élevé lorsque celui-ci n'est pas protégé, diminue beaucoup avec une protection de 5 cm de plomb (d'un facteur 25 pour une énergie voisine de 0,120 MeV, d'un facteur 10 pour une énergie comprise entre 0,600 et 1,400 MeV)

Une épaisseur plus importante de plomb (10 cm) n'est pas à envisager : elle ne diminue que peu la valeur du mouvement propre obtenue avec 5 cm ; elle nécessite, par contre, l'utilisation de grosses masses de blindage.

2 - Ces résultats nous ont conduit à construire une chambre pour y loger notre ensemble de comptage ; ses dimensions font que le récipient sphérique de 12,775 litres, rempli de l'eau à étudier, se trouve, lorsqu'il est placé en son centre, à une distance supérieure ou égale à 10 cm de chacune de ses parois de plomb (5 cm d'épaisseur) : ceci pour éviter les phénomènes de diffusion des photons γ.

Dans ces conditions, le mouvement propre du détecteur, protégé à la fois par le récipient et le blindage, est faible puisque sa valeur, exprimée en impulsions par minute, n'est plus que de 143 dans un intervalle d'énergie comprise entre 0,100 et 2,225 MeV.

3 - de ce chiffre dépend l'activité minimum n que l'on peut apprécier en un temps donné sur chaque source avec une bonne précision. Nous avons calculé les valeurs de n pour des photons γ d'énergie comprise entre 0,100 et 1,600 MeV.

Chapitre IV

Après avoir défini les caractéristiques de l'ensemble de comptage (forme du récipient, position du détecteur, blindage), nous établissons son efficacité de détection vis à vis des photons γ d'énergie variée. Nos expériences ont porté sur sept sources de radioéléments, émetteurs γ, d'activité connue avec précision (^{40}K, ^{65}Zn, ^{137}Cs, ^{51}Cr, ^{131}I, ^{144}Ce - ^{144}Pr et ^{106}Ru - ^{106}Rh).

Ces sources de 12,775 litres, placées dans le récipient sphérique logé dans la chambre blindée, sont "comptées" pendant un temps déterminé.

Connaissant le nombre de désintégrations dont elles sont le siège par unité de temps et le nombre d'impulsions comptées pendant le même temps dans la raie d'absorption totale de chaque spectre obtenu, on détermine facilement l'efficacité de détection.

Une conclusion s'impose à la suite des résultats obtenus : le détecteur n'enregistre, dans les conditions expérimentales choisies, que très peu de photons γ émis par la source : de l'ordre de 3 pour 10 000 aux énergies élevées (^{40}K : 1,460 MeV) et de 2 à 3 pour 1 000 aux plus faibles énergies (^{51}Cr : 0,310 MeV).

On conçoit dès lors la difficulté de réaliser des mesures de faible activité et l'obligation d'envisager des modifications dans notre ensemble de comptage pour atteindre le but que nous poursuivons.

Chapitre V

Quelle que soit leur origine, les eaux peuvent contenir à l'état dissous plusieurs radioéléments. Il faut donc s'attendre lorsque l'on effectue leur mesure par spectrométrie γ, à obtenir des spectres complexes et difficiles à analyser. Il est donc nécessaire de disposer d'une technique permettant leur simplification.

Nous avons choisi d'appliquer la méthode mise au point par PEIRSON et modifiée par J. HOSTE et D. de SOETE. Celle-ci, qui consiste essentiellement dans l'élimination des distributions Compton, offre l'avantage d'être d'un emploi très général (elle s'applique aussi bien à l'étude de mélanges connus ou inconnus de radioéléments) et de ne nécessiter qu'un matériel assez réduit puisqu'il suffit de disposer d'une deuxième sonde munie d'un scintillateur plastique.

Le choix de cette méthode nous a conduit à monter au Laboratoire une telle sonde et à envisager son intégration à notre ensemble de comptage.

L'emploi de ce second détecteur en association avec celui qui renferme le cristal d'INa(Tl) ne donne des résultats satisfaisants que si les distributions Compton fournies par chacun d'eux sont exactement superposables.

L'ajustement de ces distributions en énergie et en comptage ne présente pas de difficulté : il suffit, d'une part, de jouer sur les hautes tensions appliquées aux deux sondes et de connaitre, d'autre part, leur efficacité de comptage respective vis à vis des photons γ.

Nous signalons, cependant, une cause d'erreur que l'on risque de rencontrer lors de l'utilisation de ce dispositif : les pentes des fronts Compton obtenues avec les deux détecteurs ne sont pas identiques : l'une fournie par la sonde munie du scintillateur plastique (II) est beaucoup plus douce que l'autre (I) et empiète même sur la raie d'absorption totale obtenue avec le détecteur à cristal INa(Tl) (I)

Pour éviter cette interférence, nous avons adopté un procédé empirique qui nous a fourni d'assez bons résultats : en jouant sur la haute tension appliquée à la sonde (II) on déplace légèrement du côté des basses énergies la distribution Compton, donnée par II, qui n'empiète plus dès lors sur la raie d'absorption totale.

Nous donnons à titre d'exemple les spectres γ obtenus, après suppression des distributions Compton suivant ce procédé, sur quatre émetteurs γ pris isolément, ainsi que sur un mélange de ceux-ci.

En conclusion, l'emploi de cette sonde à scintillateur plastique, à laquelle on donne le nom de détecteur anti-Compton, nous sera d'une grande utilité dans l'étude des spectres complexes qui se trouvent alors réduits à un certain nombre de raies de hauteur et de surface bien définies.

Chapitre VI

Dans ce chapitre nous faisons le bilan des résultats obtenus avec le dispositif expérimental décrit plus haut et envisageons les modifications à y apporter pour effectuer la mesure de très faibles activités dans l'eau.

1 - le détecteur à cristal d'INa(Tl) utilisé jusqu'à maintenant possède une résolution médiocre et une faible efficacité de comptage. C'est pourquoi il est indispensable de le remplacer par un autre muni d'un scintillateur plus gros : cristal INa(Tl) de 7,5 × 7,5 cm. Celui que nous avons choisi possède de plus certaines qualités indispensables à son utilisation en spectrométrie fine à faible bruit de fond.

2 - la forme sphérique des récipients semble préférable aux autres. Nous conservons donc le même type de bonbonnes, tout en lui apportant les modifications nécessaires à l'utilisation d'une sonde à INa(Tl) plus grosse et du détecteur anti-Compton. Les positions de ces deux compteurs à l'intérieur des récipients ont été choisies afin d'obtenir la meilleure efficacité de détection des photons γ.

3 - le système anti-Compton après une mise au point laborieuse, donne toute satisfaction.

4 - l'étude du blindage a montré qu'une épaisseur de 5 cm de plomb entourant complètement l'ensemble de comptage diminue suffisamment le mouvement propre.

Nous avons donc construit une chambre blindée dont la forme et les dimensions répondent exactement au nouveau récipient employé. Il s'agit d'un cube de 50 cm d'arêtes intérieures, dont les six faces sont constituées par l'assemblage de briques de plomb carrées, à chevrons de 5 cm d'épaisseur. Sur deux faces, il existe une ouverture pour le passage des logements des sondes. Sur la face supérieure, une dalle mobile de plomb située juste au-dessus de l'orifice de la bonbonne permet le remplissage de celle-ci.

En conclusion, notre ensemble de comptage définitif comprend :

- 2 sondes : l'une munie d'un cristal d'INa(Tl) de 7,5 × 7,5 cm.

l'autre munie d'un scintillateur plastique de 11 × 11 cm.

- un récipient sphérique dont la capacité n'excède pas 10 litres lorsque les deux sondes occupent les positions choisies.

- une chambre blindée pour la protection de l'ensemble.

- un chassis d'aiguillage à deux voies qui relie le spectromètre aux deux sondes.

Chapitre VII

Ce chapitre est consacré à l'étude des caractéristiques de l'ensemble de mesure définitif :

1 - mouvement propre bien supérieur (d'un facteur voisin de 15) à celui que l'on obtenait avec le détecteur utilisé précédemment. Cette augmentation ne surprend pas : elle provient des dimensions du cristal dont le volume est 12 fois plus grand que dans le cas précédent.

2 - résolution et efficacité de comptage étudiées sur sept spectres γ débarrassés de leur distribution Compton et obtenues sur des sources d'activité connue avec précision : ^{51}Cr, ^{131}I, ^{106}Ru - ^{106}Rh, ^{137}Cs, ^{95}Zr - ^{95}Nb, ^{65}Zn, ^{40}K.

- la résolution du détecteur à cristal d'INa(Tl) devient moins bonne lorsque l'on effectue les mesures en bonbonne. Elle est néanmoins très acceptable puisque sa valeur, pour la raie de ^{137}Cs (0,660 MeV) se situe à 10,2 %.

- comparée à celle que l'on obtenait avec le détecteur à petit cristal d'INa(Tl) l'efficacité de comptage est bien supérieure dans ce cas puisqu'elle passe, par exemple, de 2,70 à 20,80.10^{-3} pour une énergie de 0,323 MeV, de 0,29 à 4.10^{-3} pour 1,460 MeV.

Ceci est d'un intérêt primordial car on peut espérer doser de très faibles concentrations de radioéléments dissous dans l'eau.

Connaissant le mouvement propre, la résolution et l'efficacité de détection de notre ensemble de comptage nous avons calculé l'activité γ minimale que l'on peut mesurer avec précision sur les échantillons d'eau. Pour une durée de mesure relativement courte, 210 minutes, cette activité est inférieure à celle qui correspond à la Concentration Maximale Admissible pour les Populations

de n'importe quel radioélément que l'on risque de rencontrer dans l'eau.

En conclusion, avec l'ensemble de mesure mis au point on peut :

1 - identifier dans les eaux, sans concentration préalable de celles-ci, les radioéléments qu'elles renferment.

2 - doser de très faibles concentrations de ceux-ci (inférieures aux C.M.A.P.), même sur des prélèvements qui renferment plusieurs nuclides. Nous donnons pour vérifier notre méthode, l'étude de deux échantillons d'eau contaminés volontairement par des éléments radioactifs.

Chapitre VIII

Nous étudions dans ce chapitre les principales applications de la méthode proposée et les résultats obtenus sur différents prélèvements.

1 - Mesure de la radioactivité d'eaux de fleuve contaminées par des liquides actifs.

Nous avons effectué des mesures sur un certain nombre de prélèvements d'eau.

Chaque fois, à l'aide du détecteur à cristal INa(Tl) nous n'avons compté, en 210 minutes, dans les différents canaux du spectromètre, qu'un nombre d'impulsions voisin de celui qui provient du mouvement propre du détecteur.

Ceci ne surprend pas puisque les Centrales Nucléaires ne déversent d'effluents radioactifs dans un fleuve ou une rivière qu'après s'être assurées que l'activité globale de l'eau se maintiendra toujours en dessous de la C.M.A.P. en un mélange inconnu d'émetteurs α, β ou γ c'est à dire à 10^{-8} µc/ml. Cette valeur est bien inférieure à la C.M.A.P., propre à chaque radioélément, que nous détectons facilement avec notre ensemble de comptage.

Ces résultats ne signifient pas que l'analyse par spectromètrie γ est inapplicable dans ce cas mais permettent une conclusion très intéressante au point de vue pratique :

par ce procédé, en 210 minutes, c'est à dire beaucoup plus rapidement que par la mesure de l'activité β totale on peut déterminer sans risque d'erreur, si une eau est utilisable sans danger par l'homme.

2 - Etude des retombées radioactives par la détermination de l'activité de l'eau de pluie.

Nous rapportons les résultats de plusieurs analyses effectuées sur l'eau de pluie receuillie à Lyon en juin 1963.

L'analyse du spectre γ à l'aide du détecteur anti-Compton révèle la présence dans l'eau de ^{95}Zr - ^{95}Nb, ^{103}Ru et ^{141}Ce ou ^{144}Ce - ^{144}Pr à des concentrations très voisines de celles qu'obtiennent en ce moment les laboratoires spécialisés dans cette analyse, sans qu'il ait été nécessaire de concentrer l'eau au préalable.

3 - Mesure de la radioactivité naturelle d'eaux de source.

Nous nous sommes proposé d'appliquer la méthode mise au point dans ce travail au dosage du radon dans l'eau qui le contient sans extraction préalable de ce gaz radioactif. Le radon se désintègre par émission α mais certains de ses descendants à vie courte, notamment Ra B ou $^{214}_{82}Pb$ et Ra C ou $^{214}_{83}Bi$ sont des émetteurs γ.

Nous envisageons successivement :

- les conditions de récolte de l'eau de source directement dans le récipient servant à la mesure. Il ne faut pas, en effet, que le radon puisse s'échapper avant ou pendant la mesure.

- l'identification dans le spectre γ des raies d'absorption totale correspondant aux photons γ émis par $^{214}_{82}Pb$ et $^{214}_{83}Bi$.

- l'étude de la décroissance de l'activité en fonction du temps.

- la détermination de l'activité au temps T_o correspondant à la date du prélèvement.

4 - Liquides de rejet des centrales nucléaires

Leur dosage ne présente pas de difficulté. Il suffit de préparer une dilution convenable de ceux-ci avant d'effectuer les mesures.

Nous donnons les résultats obtenus sur trois liquides de rejet : deux de composition assez voisine, le dernier un peu différent.

Le dispositif anti-Compton permet d'effectuer rapidement l'analyse des spectres γ qui ne renferment d'ailleurs qu'un nombre restreint de raies.

5 - Mesure de la radioactivité du lait

Nous complètons cette étude par l'application de notre méthode à la mesure de la radioactivité d'un échantillon de lait destiné à la consommation.

A l'aide du même mode opératoire que celui décrit pour l'analyse des eaux nous avons mis en évidence et dosé :

- ^{40}K dû aux sels de potassium que le lait renferme normalement

- ^{137}Cs et ^{106}Ru - ^{106}Rh provenant des retombées radioactives. Leur concentration respective correspond sensiblement à celle que déterminent les autres laboratoires.

En conclusion la méthode mise au point pour l'analyse des eaux s'applique également au lait. En un temps relativement court on peut non seulement identifier mais aussi doser, dans tous les liquides que nous venons de passer en revue, les différents radioéléments, émetteurs γ, qu'ils renferment.

Le Président de la Thèse :

BERGER

VU, le Doyen :

H. HERMANN

VU et permis d'imprimer
LYON, le 13 septembre 1963

Le Recteur, Président du
Conseil de l'Université,

P. LOUIS

BIBLIOGRAPHIE

Cette bibliographie n'est pas exhaustive mais sélective. Nous avons indiqué les ouvrages et articles qui nous ont paru les plus importants et qui nous ont été les plus utiles dans la poursuite de notre travail.

OUVRAGES

BAYET M. - Physique Nucléaire. Masson et Cie ed. Paris 1960

BELL P.R. - "The scintillation method" Chap. V in "Beta and Gamma ray spectroscopy". KAI SIEGBAHN. Interscience - New York 1955

BLANC D. - Détecteurs de Particules. Compteurs et Scintillateurs. Masson et Cie ed. Paris 1959

BLATZ H. - Radiation Hygiene Handbook. Mc Graw Hill Book Company Inc. ed. New York 1959

CLARK G.L. - Les Rayons X et leurs applications. Trad. franc. de M. JORAND. Dunod ed. Paris 1961

COMPTES RENDUS des journées d'études sur l'analyse par activation. 4-5 mai 1961. Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble. Presses Universitaires de France.

CROUTHAMEL C.E. - Applied Gamma-Ray spectrometry. Pergamon Press ed. Londres 1960

Madame CURIE P. - Les gaz radioactifs - Dosage du radon. Chapitre IX de "Radioactivité". Hermann et Cie ed. Paris 1935

DUQUESNE M., GREGOIRE R. et LEFORT M. - Travaux pratiques de Physique Nucléaire et de Radiochimie. Masson et Cie ed. Paris 1960

FRISCH O.R. - The Nuclear Handbook. George Newnes ed. Londres 1958

HALLIDAY D. - Introductory Nuclear Physics. John Wiley and Sons, Inc, ed. New York 1950

HEATH R.L. - Scintillation Spectrometry gamma-ray - spectrum catalogue. 1957 - Phillips Petroleum Co. Atomic Energy Division. Idaho Falls. Idaho.

Scintillateurs. DARIO edité par le bureau de documentation technique de la RADIOTECHNIQUE, 130 avenue Ledru-Rollin Paris XIe

SHARPE J. et TAYLOR D. - Mesure et détection des Rayonnements nucléaires. Trad. franç. de J. CHATENET. Dunod ed. Paris 1958

Les tubes Photomultiplicateurs. DARIO. édité par le bureau de documentation technique de la RADIOTECHNIQUE.

ARTICLES

ALBERT R.D. - An Anticoincidence Gamma-Ray Scintillation Spectrometer. Rev. Sci. Instr. 24, 12, 1096, 1953

Analytical method for the determination of ^{103}Ru, ^{106}Ru, ^{137}Cs, ^{95}Zr - ^{95}Nb and ^{144}Ce in shore sand and sea silt samples. Report 312 presented by Technical Manager (Chemical Services), Technical Department, Windscale. United Kingdom Atomic Energy Authority. Production Group. Head quarters, Risley, Warrington, Lancashire - 1962

BAIR J.K. and MAIENSCHEIN F.C. - Three-Crystal Scintillation Spectrometer. Rev. Sci. Instr. 22, 5, 343 1951.

BENTLEY R.E., PARKER R.P., TAYLOR D.M. et TAYLOR P.M. - ^{131}I and other fission products in drinking waters. Nature 194, 736, 1962.

BERGER M.J. and DOGGET J. - Response function of NaI(Tl) Scintillation Counters. Rev. Sci. Instr. 27, n°5, 269, 1956

BONI A.L. - Rapid determination of mixed β-γ radionuclides in urine. Health Physics, 2, 186, 1959

CHHABRA A.S. et HUKKO R.K. - Natural and fall-out γ activity in food stuffs. Health Physics 7, 151, 1962.

CHILDERS H.M. - Analysis of single Crystal Pulse-Height Distributions. Rev. Sci. Instr. 30, n°9, 810 1959

CIANFLONE F. et TRIULZI - Tecniche, apparechiature e dati sperimentali per l'analisi chimica e radiochimica. Chapitre 4 : spettrometria gamma : misure con analizatore a 200 canali e monocanale a scansione automatica. Rapporto n°82 - Centro Informazioni Studi Esperienze - Milan 1960

CONNALLY R.E. - Instrumental methods of gamma-ray spectrometry. Analyt. Chem. 28, 12, 1847, 1956

CONNALLY R.E. et LEBOEUF M.B. - Analysis of Radionuclide mixtures. Analyt. Chem. 25, 1095, 1953

COOK C. - The energy spectrum of γ radiation from fallout. Health Physics 4, 42, 1960

COVELL D.F. - Determination of gamma-ray abundance directly from the total absorption peak. Analyt. Chem. 31, 1785, 1959

CRASEMANN B. et EASTERDAY H. - Locating Compton edges and bascatter peaks in scintillation spectra. DATA SHEET n° 13. Nucleonics 14, n°6, 63, 1956

GAGLIONE P., MALVICINI A., VIDO L. - La spettrometria gamma nella determinazione del contaminazioni radioattive dei generi alimenteri.Centro di Studi Nucleari di Ispra - Gruppo Fisica Sanitaria.

GILBERT C.W. - Simultaneous Estimation of Several Radioactive Nuclides. J. Appl. Radiat. 8, 230, 1960

HAGEE G.R., KARCHES G.J. and GOLDIN A.S. - Determination of ^{131}I, ^{137}Cs and ^{140}Ba in fluid milk by gamma spectroscopy. TALANTA 5, 36, 1960

HEATH R.L. - Standardization of Techniques in the use of scintillation spectrometry for routine analysis. Phillips Petroleum Co. Atomic Energy Division. Idaho Falls. Idaho.

HEATH R.L. - The development of a spectrum catalogue and data processing techniques for the gamma Ray Scintillation Spectrometer. in International Conference : "Modern Trends in Activation Analysis". 15-16/12/1961 at College Station. Texas.

HENEVELD W.H. et BORGHOLTHAUS D. - A Computer Technique for Spectral Analyses. Trans. Amer. Nuclear Soc. 3, 93, 1960

HOFSTADTER R. and INTYRE J.A. Mc - Measurement of gamma-ray energies with two crystals in coincidence. Phys. Rev. 78, 619, 1950

IREDALE P. cité par PEIRSON D.H.

Mc ISAAC cité par COVELL D.F.

JEANMAIRE L. - Expérience acquise dans la spectrométrie gamma. Rapport C.E.A. 1 504. 1960

JULKE R.T., MONAHAN J.E., RABOY S. et TRAIL C.C. - The measurement of energy and intensity of gamma rays by use of a scintillation spectrometer. Rapport n° 6499 de Argonne National Laboratory Argonne - Illinois - Avril 1962

JULLIOT C. - Spectrographe γ. Principes. Utilisations. Rapport C.E.A. n° 1429 - 1960

KELLEY C.G., BELL P.R., DAVIS R.C. et LAZAR N.H. - I.R.E. Transactions scintillator. Counter Symposium N S 3 n°4, 57, 1956

KERR J.R.W., COOMBER D.E. et LEWIS D.T. - The use of Bi radionuclides in analysis. Part II : the détermination of radon in waters. Analyst. 87, 944, 1962

KUYKENDALL W.E. and WAINERDI R.E. - The Analysis of a decaying complex gamma spectrum utilizing the IBM 704 Digital Computer. Trans. Amer. Nuclear Soc. 3, 95, 1960

LAZAR N.H., DAVIS R.C. et BELL P.R. - Peak efficiency of NaI. Nucleonics 14, n°4 52, 1956

LEE W. - Direct estimation of gamma-ray abundances in radionuclide mixtures. Complement Subtraction Method. Anal. Chem. 31, 800, 1959

LEVEQUE P. - Utilisation de la spectrographie gamma dans l'analyse par activation. Rapport C.E.A. n° 1249. 1959

MALE J., MILLER J., SCHUHL C.G. et TZARA C. - Spectromètre gamma à Anticoïncidences. - Centre d'Etudes Nucléaires de SACLAY, Rapport Intérieur S.R.N.M. E.

MANDUCHI C., NARDELLI G. e RUSSO-MANDUCHI M.T. - Spettrometro a scintillazione con riduzione del contributo Compton. n°1 del supplemento al vol. 21, serie X del Nuovo Cimento paj. 87, 93

MAY H.A. and MARINELLI L.D. - Rapport n° 6199 de Argonne National Laboratory - Argonne - Illinois Factors determining the ultimate detection sensitivity of gamma scintillation spectrometry. Published in "Proceedings of the total absorption gamma-ray spectrometry symposium". Gatlinburg, Tenn. May 10-11 1960

MILLER W.F., REYNOLDS J. and SNOW W.J. - Efficiencies and Photofractions for Sodium-Iodide Crystals. Rev. Sci. Instr. 28 n°9, 717, 1957

PEIRSON D.H. - A two-crystal gamma-ray scintillation spectrometer. Nature, 173, 990, 1954

PEIRSON D.H. - Interpretation of γ - ray scintillation spectra from fission-product mixtures. British Journal of Applied Physics. 11, 346, 1960

PERKINS R.W. - A large well crystal for the direct measurement of trace amounts of radioisotopes in environmental samples. Health Physics 7, 81, 1961

ROSS D.A. - Medical gamma-ray spectrometry. Oak Ridge Institute of Nuclear Studies 30, Dec. 10 1959

SALMON L. - Analysis of gamma-Ray Scintillation Spectra by the method of Least Squares. Nuclear Instruments and Methods 14, 193, 1961

Von SCHNEIDER Th. et MUNZEL H. du Centre d'Etudes Nucléaires de KARLSRUHE - Zur Analyse einfacher und Komplexer Gamma Spektren. ATOMPRAXIS Nov. 1961

SMITH G.W. et FARMELO D.R. - Radionuclides arranged by gamma-ray energy. DATA SHEET n°22. Nucleonics 16, 81, 1958

de SOETE D. et HOSTE J. - New trends in activation analysis. Texas Conference, Dec. 1961

de SOETE D. et HOSTE J. - Predicting Gamma Resolution. Nucleonics, 20, 4, 72, 1962

de SOETE D. - Etude du système anti-Compton selon PEIRSON. Rapport de stage. Juillet 1962, Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble.

de SOETE D. - Communication personnelle.

STORY E.J. et WALTNR A.W. - Measurement of radioactivity in air filters.Health Physics 2, 49, 1959

VOHRA K.G., BHATNAGAR V.S., MISHRA U.S. et RAGUPATHY S. - Measurement of ^{137}Cs in milk. Health Physics 6, 142, 1961.

WEST H.I. et JOHNSTON B. - cité par SCHNEIDER Th. et MUNZEL H.

Les Rapports C.E.A. nous ont été fournis gracieusement par le Service de Documentation du Centre d'Etudes Nucléaires de SACLAY. Boîte Postale n°2 - GIF sur YVETTE (S-et-O).

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION p. 1

PLAN 7

PREMIERE PARTIE

Chapitre I

Les rayons gamma. Origine. Propriétés. Leur interaction avec la matière. 9

1. Généralités 9
2. Origine des rayons γ émis par une source radioactive. 9
3. Interaction des rayons γ avec la matière. 11

Chapitre II

Détection des rayonnements γ. Détecteur à scintillation. Spectromètrie γ. 17

1. Détecteur à scintillation 17
2. Ensemble de comptage des rayons γ. 23
3. Spectromètrie γ 24
4. Efficacité de comptage. Résolution. Mouvement propre de l'ensemble de détection. 32

Chapitre III

Analyse qualitative et quantitative d'un mélange de radioéléments par spectromètrie γ. 39

1. Simplification des spectres complexes 40
2. Etude directe des spectres complexes 45

DEUXIEME PARTIE

Chapitre I

Position du problème. Analyse des Travaux antérieurs. 53

1. Position du problème 53

2. Travaux personnels p. 57

Chapitre II

Etude de la géométrie optimum de l'échantillon 63

1. Répartition de l'échantillon autour du détecteur 63

2. Choix du volume d'eau à analyser 65

Chapitre III

Détermination du mouvement propre de l'ensemble de comptage. Sa valeur minimum. Son influence sur la précision de l'analyse radiochimique. 71

1. Expériences 71

2. Activité minimum détectable sur une source 74

Chapitre IV

Détermination de l'efficacité de détection de l'ensemble de comptage en fonction de l'énergie des photons γ. Activité minimum mesurable avec précision. 79

1. Efficacité de détection de l'ensemble de comptage 79

2. Limite de détection 81

Chapitre V

Etude des spectres complexes obtenus dans le cas d'un mélange de radioéléments. Elimination des distributions Compton. 85

1. Caractéristiques du détecteur à scintillateur plastique. 87

2. Conditions d'utilisation du détecteur à scintillateur plastique en association avec le détecteur à cristal INa(Tl) 87

Chapitre VI

Description de l'ensemble de mesure définitif. p. 93

1. Modifications à apporter à l'ensemble de comptage expérimental. 93
2. Ensemble de comptage définitif. Détecteur. Récipient de mesure. Chambre blindée 94

Chapitre VII

Etude des caractéristiques de l'ensemble de mesure définitif. 99

1. Etude du mouvement propre 100
2. Etude des spectres γ obtenus sur différentes sources de radioéléments. 101
3. Détermination de l'activité γ minimum mesurable avec précision sur les échantillons d'eau. 104
4. Vérification de la méthode par l'étude de solutions d'activité γ connue. 111

Chapitre VIII

Quelques applications de la méthode proposée 115

1. Récolte et préparation des prélèvements 115
2. Résultats obtenus sur différents échantillons liquides
   - eau de fleuve contaminée par des rejets radioactifs 117
   - eau de pluie 118
   - eau de source 120
   - liquides de rejets radioactifs 123
   - lait 131

CONCLUSIONS GENERALES 135

BIBLIOGRAPHIE 147